

東京工業大学

極低温研究支援センターだより

No. 34

最近の研究概要

令和2年度

(2020)

目次

| | | | | |
|---|----------------|----------|-------|----|
| 1 | ご挨拶 | 田中秀数 | | 1 |
| 2 | 2020年度の活動報告 | 大熊 哲 | | 2 |
| | センター発表会プログラム | | | 7 |
| 3 | 技術情報 | 藤澤真士 | | 8 |
| 4 | センターからのお知らせ1 | 藤澤真士 | | 17 |
| | センターからのお知らせ2 | 大熊 哲 | | 19 |
| 5 | 研究報告 | 田中研究室 | | 23 |
| | | 金森研究室 | | 28 |
| | | 平原研究室 | | 30 |
| | | 西野研究室 | | 33 |
| | | 腰原・沖本研究室 | | 34 |
| | | 森研究室 | | 36 |
| | | 大友研究室 | | 40 |
| | | 浅田研究室 | | 43 |
| | | 小寺研究室 | | 47 |
| | | 藤澤研究室 | | 53 |
| | | 大熊研究室 | | 59 |
| 6 | 業績リスト | | | 65 |
| 7 | 大岡山利用研究室一覧 | | | 83 |
| 8 | 運営委員・専門委員・職員名簿 | | | 85 |

1. ご挨拶

極低温研究支援センター長 田中秀数

令和2年度「極低温研究支援センターだより」をお届け致します。

極低温研究支援センターは、ヘリウムの液化、寒剤（液体ヘリウム、液体窒素）の供給、低温技術や安全に関する講習会の開催、低温研究に関する研究会の開催を通して、本学の研究を支援しています。また、高校生や一般市民を対象に、ヘリウムのもつ不思議な性質や極低温で起こる不思議な物理現象を紹介する啓蒙活動も行っています。この「極低温研究支援センターだより」には、本センターが行っている液体ヘリウムのリサイクルシステムと液化業務、低温技術や安全に関する講習会及び啓蒙活動の報告、寒剤を扱う上で必要な技術情報、そして寒剤ユーザーの研究成果の一端がまとめられています。

液体ヘリウムや液体窒素は実験試料を冷やすために使われるほか、超伝導磁石、SQUID磁束計、物理特性の測定システム、有機物の構造決定のための高分解能NMR装置などの精密機器の維持に不可欠な寒剤です。本学には研究水準の高さを反映して、寒剤を必要とする上記の精密機器が多く導入されています。このため、本センターでは2名の技術職員と1名の技術員の3名体制で大岡山地区部門・すずかけ台地区部門の業務にあたり、寒剤の安定的な供給に努めています。すずかけ台地区のヘリウム液化装置は大岡山地区から移設した古い装置であるために、不具合がたびたび発生していましたが、本学執行部のご理解により、ヘリウム液化装置の更新が認められ、昨年12月に導入されました。試運転も終わり、本格的なヘリウム供給に向けて準備を行なっております。これにより、すずかけ台地区でのヘリウムの安定供給が図られ、すずかけ台地区の研究体制が一段と強化されます。

寒剤に関する昨今の最も深刻な問題は、一昨年にヘリウムガスの輸入が著しく停滞し、全国的にヘリウム不足が深刻な状況になったことです。昨年からはヘリウムガスの輸入が少しずつ改善されてきましたが、ヘリウム不足は続いており、価格は高止まっています。本センターではヘリウム回収率向上に一層努め、このヘリウム危機を乗り切るべく努力致す所存です。今後とも皆様のご理解とご協力を賜りますよう、お願い申し上げます。

2. 2020（令和2）年度の活動報告

大熊 哲

○組織改革から3年目 —すずかけ台の液化機更新される—

組織改革により極低温研究支援センターに大岡山地区部門とすずかけ台地区部門が設置されてから、3年目を迎えました。田中秀数センター長の下、これまでどおり大岡山地区部門は大熊哲・藤澤利正教授、すずかけ台地区部門は川路均・宗片比呂夫教授の体制で運営を行っています。今年度はコロナ禍で、大学もセンターの活動も大きな影響を受けました。図1のグラフに示すように、大岡山の液体ヘリウムの供給量は、特に上半期は、例年より大きく落ち込みました。毎年4月に実施している安全講習会（低温技術講習会）は時期を9月にずらして、また研究発表会はいつもどおり1月に、いずれもZoomによるオンラインで開催しました。これまで同様、大岡山とすずかけ台の合同での開催となりました。

2020年度の大きなできごととして、すずかけ台の液化機の更新があげられます。すずかけ台では2012年に大岡山から移設された液化装置による液化運転が開始された直後から、宗片教授を中心に設備更新の準備が進められてきました。その後、川路教授も加わって更新の要求が行われ、ようやく一昨年に予算が認められることとなりました。

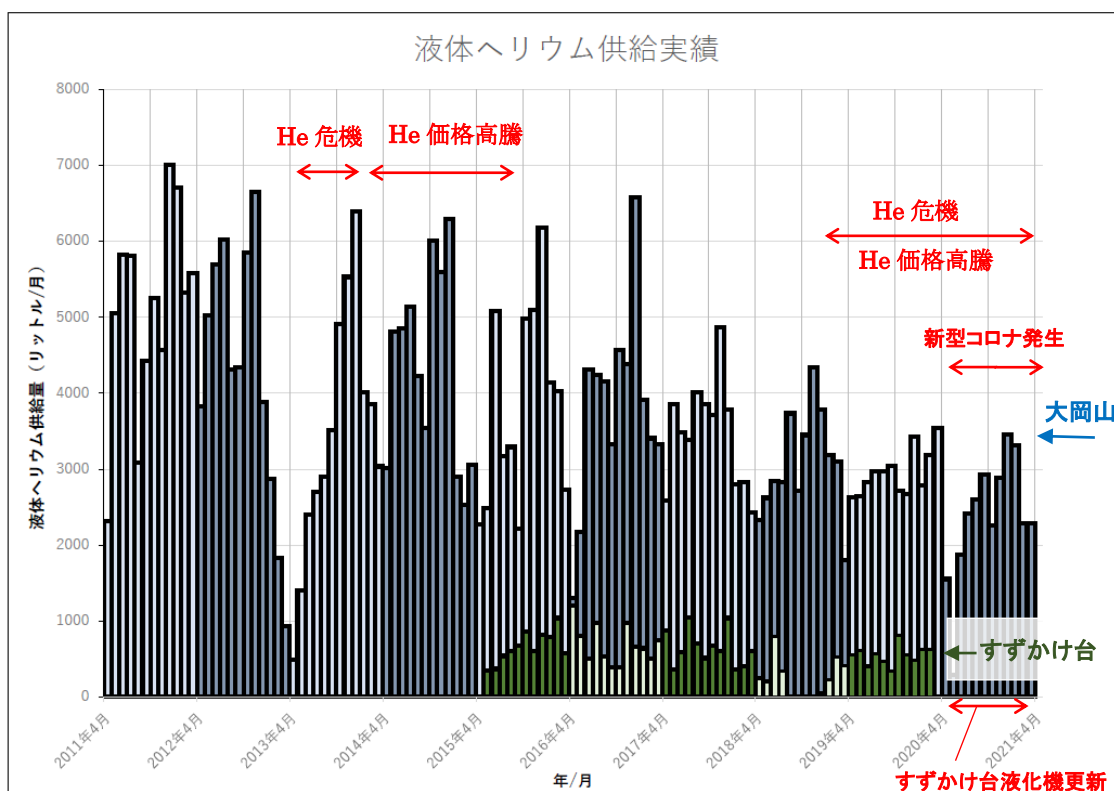


図1 大岡山（上グラフ）とすずかけ台（下グラフ）における液体 He の月別供給量（2021年3月途中迄）。2013年の He 危機では、止むを得ず供給制限を行ったことにより供給量が大きく減少した。2018年から始まった2回目の He 危機は収まったように見えるが、先行きは不透明な点も多く、He 価格の高騰という形で危機は現在も続いている。



図2 すずかけ台液化室へ新しい液化装置を設置している様子。

2020年12月迄には装置設置の工事（図2）と高圧ガス設備の法定検査が終了し、引き続きヘリウム液化の調整運転が行われました。出川悦啓技術職員の立ち合いの下、3月までに性能チェックを終え、無事に装置納入が完了しました。大学執行部をはじめ、液化機更新のためご尽力いただいたすべての皆様にお礼を申し上げます。

すずかけ台ではもうひとつ設備の導入が行われました。それは液化機の故障時に、大岡山など他の液化施設にヘリウムガスを輸送し、液化・供給を受けるためのバックアップ用のインターフェイス設備です。具体的には、長尺ヘリウムガス容器から輸送用のヘリウムガスカードルに、原料となる回収ガスを充填し移送するために用いる高圧ガス配管設備です。図3はヘリウムガスカードルへ接続する末端部の写真です。昨年度にすずかけ台の液化用圧縮機が故障したことを契機に計画されたものでした。コロナ禍で工事が遅れるなどの理由により、2020年度には当初予定していた量の運用はできませんでしたが、実際にすずかけ台の回収ガスを大岡山で精製・液化し、すずかけ台に戻すという作業を実施しました（図4）。

本設備が設置されたことにより、将来のすずかけ台のヘリウム供給は、より安定的なものになると期待されます。



図3 すずかけ台液化室に新設された高圧ガス移送用の高圧ガス配管設備の一部。



図4 すずかけ台で高圧充填された回収ヘリウムガスを大岡山液化室に搬入している様子。→

○大岡山のヘリウム液化装置の稼働状況

大岡山地区では、2011 年度に更新されたヘリウム液化装置は順調に稼働していますが、2020 年度にはヘリウムガス回収系の回収ガスホルダーとヘリウムガス回収圧縮機に予期しない不具合が発生しました。このため、短期間ではありますが液体ヘリウムの供給制限を行いました。このトラブルによって、長尺容器内の回収ヘリウムガスに大量の空気が混入し、それに伴い、少なからぬ量のヘリウムガスが失われました。影響は長期に及び、2021 年 3 月現在でも、混入した空気を取り除く精製作業を続けています。

主な原因は、平成 7 年に導入された、回収ガスホルダーの付帯装置であるレベル計の経年劣化にあることが判明しました。コロナ禍のため、製造業者による修理作業が大幅に遅れましたが、その間、藤澤真士技術職員と金本真知技術支援員の懸命の応急対応により、ヘリウムガスのロスを最小限に抑えることができました。詳しい説明は、後述の技術情報を参照ください。



図5 センター技術職員による回収ガスホルダーの応急修理の様子。

○ヘリウム危機の状況

すでにお知らせしてありますように、米国からのヘリウムの輸出量削減および不安定な中東情勢により、日本国内へのヘリウム輸入量が大幅に減少しています。一方で、世界的な産業用途や医療用 MRI の利用拡大から、世界中でヘリウム需要が高まっています。これらの理由により、2018 年から国内でのヘリウム供給が逼迫し、研究機関への影響が出始めています。大岡山では、ここ暫くの間ヘリウムガスの年間購入契約ができない状況が続いています。2019 年 4 月以降、必要量のヘリウムガスの購入は可能となっているものの、購入価格は引き続きこれまでの 2 倍（すずかけ台では 3 倍）となっており、研究への影響が心配されます。大岡山ではこれまで同様、回収率に応じて利用単価に大きな差をつけ、平均単価も従来より高く設定させていただいております。皆様にはご不便をおかけしますがご理解をいただくと共に、これまで以上に回収率の向上に努めていただきますようご協力をお願い申し上げます。回収配管が使える研究室につきましては、是非回収配管を通しての回収をお願いいたします。

○ 技術スタッフの見学・交流等の記録

今年度はオンラインのみとなりましたが、以下に示すように、センターの技術スタッフは業務に支障のない範囲で、他大学のヘリウム液化施設等の見学や講習会への参加を積極的に行い、最新の情報の収集と発信、および人的交流を絶えず行っています。

保安教育実施記録

| |
|---|
| <p>意見交換会「コロナ下での液化室・低温センター対応他」 主催：東京大学 物性研究所 低温液化室 実施年月日：2020年12月9日(水) 15:00-17:00 場所：Zoom によるオンライン開催 対象者：センター職員(参加者：金本真知) 内容：全国の大学・研究施設においてヘリウム液化業務に従事する技術職員と意見交換を行った。</p> |
| <p>高圧ガス製造者・貯蔵所所有者保安講習 主催：公益社団法人 東京都高圧ガス保安協会 実施年月日：2021年2月2日(火) 場所：Zoom ウェビナーのオンライン講習 対象者：センター職員(受講者：藤澤真士) 内容：「保安法の基礎、製造事業所、貯蔵所、ガスの物性・特性、危険性、事故事例」「東京都の高圧ガス事故の動向、高圧ガス移動車両の点検結果、移動基準」について学んだ。</p> |
| <p>日本物理学会第76回年次大会 主催：日本物理学会 実施年月日：2021年3月12日(金)-15日(月) 場所：Zoom によるオンライン開催 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士) 内容：低温技術に関する最新の情報を集めた。</p> |

○ その他の活動

2020年度に本センターで実施したイベントやセンターの活動状況を以下に記します。その一部は、センターのホームページ (<http://www.rcltp.titech.ac.jp/>) 上でも公開しています。

2020年

4月「新入生オリエンテーション」における研究紹介 → 中止

例年、理学院の新入生オリエンテーションに際し、センター研究室の公開を行ってまいりました。しかし、残念ながら本年度は新型コロナウイルス拡大防止の観点から、全学的に中止となりました。

「極低温センターだより No. 33」の発行

学内の低温研究者の情報交換と本学の低温関連分野のアクティビティを広く学内外の方々に知っていただくことを目的として、本センターおよびセンター利用研究室の研究成果の概要をまとめた年次報告書「極低温研究支援センターだより No.33」を発行しました。

電子版を極低温センターの web ページからダウンロードすることができます。
<http://www.rcltp.titech.ac.jp/report/index.html>

8月「オープンキャンパス」における施設公開 → 中止

毎年 8 月の夏休み期間中に開催される東工大（大岡山）の「オープンキャンパス」に協力し、中高生などを対象とする施設公開を行ってきました。しかし、今年度は新型コロナウイルス感染予防のため、本イベントは中止となりました、

9月「第 31 回低温技術講習会」の開催 —高圧ガス・寒剤取扱上の安全教育—

毎年、新規にセンターを利用する教職員・学生を対象とする講習会を 4 月に実施してまいりました。本年度は新型コロナ感染予防のため 4 月には実施できず、感染警戒レベルが下がった 9 月に開催時期を遅らせ Zoom によるオンラインで実施しました。本講習会は寒剤や高圧ガスを取り扱う上での安全教育と低温技術全般にわたる実践的な教育を目的としています。

内容はガスボンベ等の高圧ガス取り扱い上の注意、低温技術の基礎、液体ヘリウム・液体窒素の寒剤取り扱い上の留意点、事故の事例紹介に基づく安全教育を中心としています。低温物性の基礎、さらに、クライオスタットの構造、設計に関する実践的な講義も含まれます。例年は講習会の後半に液化室で実施していた、ヘリウム液化システムの紹介、液体ヘリウムの汲み出しの実演、デモ実験、および液体窒素自動汲み出し装置の取り扱いの説明は、本年度は実施できませんでした。

11-12 月「高圧ガス保安検査」の実施

高圧ガス保安法に基づく定期自主検査を 11 月に実施しました。引き続き、12 月には東京都の 4 名の検査官による高圧ガス保安検査を受検しました。本年度も、例年同様、良好な管理運営がなされているとの講評をいただきました。

2021 年

1 月「極低温センター研究発表会」の開催

極低温センターおよびセンターを利用する関連研究グループの 1 年間の研究の成果を紹介し、研究室間の交流を深めることを目的して、毎年 1 月に開催している研究発表会です。今回は Zoom によるオンライン開催となりました。昨年同様、すずかけ台キャンパスの方々も参加されました。参加者の研究分野は、物理、化学、材料、応用化学、電気電子、フロンティア材料など多岐にわたります。講師の皆様には非専門家向けのわかりやすいイントロダクションも含め、最先端の興味深いお話しをしていただきました。講演者と講演題目は、後につけましたプログラムを参照ください。今後も大岡山とすずかけ台キャンパスの合同で続けてまいります。

極低温研究支援センター研究発表会のお知らせ

極低温研究支援センター長 田中 秀数

下記のように極低温研究支援センターの研究発表会を開催いたします。多数の皆様のご参加をお待ちしております。

日時・場所 2021年1月27日(水) Zoomによるオンライン開催

登録リンク: <https://zoom.us/meeting/register/tJclduyvpjkqGtw3YCKDZgXJ61IDqPdYDHS0>

ミーティングID: 938 1578 2008 パスコード: BJ2?6d1N1Y

13:00-13:05 開会の辞
田中 秀数 (理学院物理学系・極低温センター長) 座長: 大熊 哲

13:05-13:25 二次元三角格子 NbO₂層における強相関電子と超伝導
相馬 拓人 (物質理工学院応用化学系 大友研)

13:25-13:45 電子強誘電体の非線形光学応答
沖本 洋一 (理学院化学系 腰原・沖本研)

13:45-14:05 真性モット絶縁体 beta-(BEDT-TTF)TaF₆の構造と基底状態
川本 正 (物質理工学院材料系 森研)

休憩 (10分)

14:15-14:35 熱電効果測定で探る2次元超伝導体の量子臨界現象と渦糸状態
家永 紘一郎 (理学院物理学系 大熊研) 座長: 藤澤 利正

14:35~14:55 トポロジカル絶縁体への磁性原子層挿入による磁気拡張
平原 徹 (理学院物理学系 平原研)

14:55-15:15 金属絶縁体転移にともなう熱伝導率変化の研究
気谷 卓 (科学技術創成研究院フロンティア材料研究所 川路研)

15:15-15:35 物理形成シリコン量子ドット中の単発トンネリングの観測
溝口 来成 (工学院電気電子系 小寺研)

休憩 (10分)

15:45-16:05 整数/分数量子ホールY接合における量子化された電荷分数化現象
藤澤 利正 (理学院物理学系 藤澤研) 座長: 川路 均

16:05-16:25 スピン1/2 正方格子 J1 - J2 反強磁性体におけるボンドランダムネス効果
渡邊 正理 (理学院物理学系 田中研)

16:25-16:45 円偏光発光ダイオードとがん細胞検出
西沢 望 (科学技術創成研究院未来産業技術研究所 宗片研)

16:45-17:05 タンタル酸化物中に形成されたアセチレン分子接合の非弾性トンネル分光計測
金子 哲 (理学院化学系 西野研)

17:05-17:10 閉会の辞
大熊 哲 (理学院物理学系・極低温センター)

連絡先 物理学系 大熊 哲 sokuma@o.cc.titech.ac.jp (内線 3252)

3. 技術情報

大岡山キャンパスにおけるヘリウムガス回収に関わるトラブル

○藤澤 真士^{A,B}、金本 真知^B、大熊 哲^{B,C}

オープンファシリティセンター^A、極低温研究支援センター^B、理学院物理学系^C

1 はじめに

2020 年度は極低温研究支援センター(以下センター)でいくつかのトラブルが重なった。比較的軽微なトラブルとしては、冷却塔水配管の水漏れがあり、これは部品交換工事によりすぐに解消した。軽微とは言えないトラブルは、ヘリウムガス回収に関わるものである。具体的には、回収ガスホルダー(以下ガスホルダー)のレベル計の故障と、回収圧縮機の電気系の故障である。今回はこのトラブルについて報告する。まずガスホルダーについて説明し、次に生じたトラブルとその対処、今後の対策案について記述する。

2 ガスホルダーと付帯設備

個別のトラブルの説明の前に、ガスホルダー、ガスホルダーのレベル計(以下レベル計)、ブリザーバルブについて説明する。

2.1 ガスホルダー

学内で実験に用いられた液体ヘリウムは、蒸発してガスになり、ヘリウム回収配管を通してセンターへ戻ってくる。センターの積算流量計を通過後に、ガスホルダーに一時的に貯められる。ガスホルダーの外観は図1である。この中には、ネオプレン製の風船(膜)が入っており、ヘリウムガスを最大 30 m³貯めることができる。ガスホルダー内部の構造に関しては図2を参考にして欲しい。ガスホルダー内のヘリウムガスの増減により風船が膨張・収縮する。



図1 ガスホルダー外観

図3はガスホルダー内部を上側から撮影した写真である。赤い部分は金属の壁で、黒く膨らんで

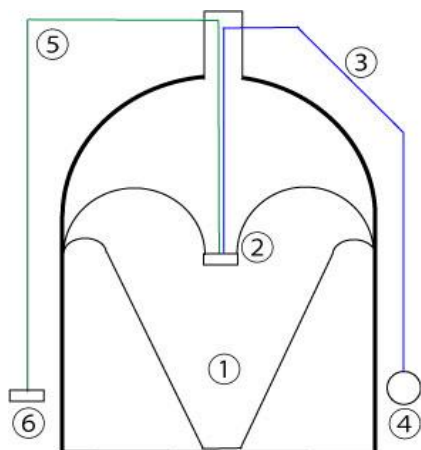


図2 ガスホルダー模式図(断面)

- ① ガスが貯まる領域
- ② 円盤(ウェイト)
- ③ 測長テープ
- ④ レベル計
- ⑤ 円盤を吊るワイヤ
- ⑥ カウンターウエイト

いる部分がネオプレン製の風船である。風船の上部中心にはウェイトとなる灰色の円盤が付いている。中央にある2本のワイヤは、円盤を吊るワイヤ(図2⑤)と、円盤の高さを知るためのレベル計の測長テープ(図2③)である。円盤を吊るワイヤを逆側に辿っていくと滑車で向きが変えられ下方方向に伸びていく。その先には重りが付いており、重りの増減で風船内の圧力を調整できる。

図2①のガスが貯められる領域の圧力は、大気圧より15 mmAq (≈ 147 Pa)程度高い正圧に保たれている。ガスが貯まり、レベル計の表示が85%に達すると、レベル計から回収圧縮機に運転開始の信号が送られる。回収圧縮機が運転を開始し、ガスホルダー内のヘリウムガスは長尺容器へ移送される。レベル計の表示が5.5%になると、レベル計からの信号により回収圧縮機は運転を停止する。長尺容器は高压状態でガスを貯めることができ、その容量は標準状態換算で2700 m³ (内訳: 60 m³が30本、75 m³が12本)である。



図3 ガスホルダー内部1。上部より撮影



図4 レベル計

2.2 レベル計

レベル計は東京計装株式会社のFT-1000シリーズを利用している[1]。参考文献欄のURLにアクセスすると、カタログPDFへリンクされている。レベル計の内部構造に関しては、そのPDFに記載されている図を参照して欲しい。

レベル計はガスホルダーの近くに設置されており、図4は実際に利用しているレベル計の写真である。レベル計からは上方向に測長テープが出ており、ガイド管の中を3つの滑車で方向を変えられ、ガスホルダー内の円盤につながれている。測長テープは、レベル計内部にあるスプリング(コンストンスプリング)によって引っ張られている。測長テープの巻き取られ具合から、円盤の高さがわかり、高さからガスホルダー内に貯められたヘリウムガスの量を換算する。

レベル計にはその値によって、電気信号を出す機構が備わっている。この機構により回収圧縮機の運転開始と運転停止も行う。測長テープの巻き取られ具合に応じて、レベル計の内部にあるカムがゆっくり回転し、カムの凸部がマイクロスイッチを押す。このカムは4つ付いており、レベル計の示す値によって、信号を回収圧縮機に送る。カムはレベル計の背面を開けると調節可能で、カムの凸部の位置を回転させることで、設定値を変更できる。

4つのカムに対応するマイクロスイッチを、ガスホルダー内のガスの量が多い順に、HH、H、L、LLと呼んでいる。それぞれの対応するレベル計の数値とマイクロスイッチの役割を以下に記す。

| | | | |
|----|---|-------|---------------------------------|
| HH | : | 88.5% | (ガス量が最大値直前) 警報 |
| H | : | 85% | (回収圧縮機の「自動モード」において) 運転開始 |
| L | : | 5.5% | (回収圧縮機の「自動モード」において) 運転停止 |

LL : 2.5% (ガス量が最小値直前) 警報、(「モード」に関わらず)回収圧縮機の停止

2.3 ブリザーバルブ

ヘリウムガスが大量にガスホルダーに流入し、圧力が異常に高くなった場合や、回収圧縮機がトラブルで自動停止せず動き続け、ガスホルダー内が負圧になった場合に、風船に損傷を与える可能性がある。風船への損傷を回避するために、ブリザーバルブ(図5)が付いている。バルブ内の圧力が、「大気圧 + 100 mmAq」以上でヘリウムガスを吐出し、「大気圧 - 100 mmAq」で大気を吸入する。センターでは、金子産業製のK型ブリザーバルブを利用している。吐出吸入の仕組みに関しては、メーカーのウェブサイトが参考になる[2]。



図5 ブリザーバルブ

3 トラブルと対処

3.1 レベル計のトラブルと対処 1

2.1で説明したように、通常、ガスホルダー内のガスの量によって、レベル計の表示値は変化する。しかし、2020年1月から、レベル計が正常に動作しなくなった。この件については昨年度のセンター便りでも報告した[3]。改めてどのような不具合が生じたかと、それに対する対処をここでは記述する。

3.1.1 トラブルの詳細

レベル計が正確な値を表示するには、測長テープがガスホルダー内のガスの量に応じて滞りなく動く必要がある。言い換えると、ガスホルダー内の円盤からレベル計本体まで、測長テープはたわみなく張っている必要がある。

トラブルはガスホルダーにガスが増えていく過程で起きる。ガスがガスホルダー内に貯まってくるとき、測長テープがレベル計本体にうまく巻き取られずに、測長テープが途中でたわんでしまう。このような状況では、レベル計は正確な表示を示さない。測長テープを、レベル計側から引き離すように手で軽く引っ張ると、スプリングの機能が一時的に回復し、レベル計側に測長テープが巻き込まれ、測長テープのたわみは一時的に解消される。しかし、このようにたわみを解消しても、再度ガスが貯まってくるときに、同じ個所で何度もたわみが生じる。また、このようなたわみが生じる場所は一か所ではなく、複数の場所で生じた。

回収圧縮機を動かし、ガスホルダーからガスが減っていく過程では、たわみを解消するように測長テープは動く。たわみが解消されるまでレベル計の表示は動かないが、ガスが減り、たわみが解消された後は、レベル計は正確な表示を示す。これらの症状から、測長テープの折れ曲がりや、途中の滑車の不具合、レベル計内にあるスプリングの不具合、などが原因として推察される。

レベル計が正確な値を示さないと、回収圧縮機の運転開始ができない。2.2で記したように、回収圧縮機は、ガスの量が85%のところまで運転を開始し、5.5%で停止する設定になっている。例えば、60%未満の領域では正常だが、60%以上の領域ではうまく表示されないとしよう。このようなレベル計が正確に機能しない状況では、いつまでたっても回収圧縮機の運転開始ができず、自動的にガスを回収できない。

3.1.2 一時的な対処と症状の悪化

ガスホルダーの膨らみ具合を目視し、回収圧縮機を手動で動かすことはできるが、夜や休日に手動で行うことは無理がある。いずれレベル計の修理は必要であるが、当初は間に合わせの手段で対応した。レベル計がまともに機能する領域(例えば 60%未満だけ)を使用し、その範囲内で回収圧縮機のオンオフを行うように設定を変更した。これで、当面の間装置は動き続けた。

レベル計の不具合はさらに悪化し、正常に利用できる表示範囲は時とともに狭くなった。利用範囲が狭くなるたびに、設定を変更した。2020 年 1 月頃は 60%未満で運用し、同 3 月頃は 40%未満で運用した。後の話になるが、2020 年 10 月末頃は、23%~29%の領域で運用し、ごく限られた範囲でしかレベル計を利用できなくなった。結果として回収圧縮機のオンオフを頻繁に行った。

3.2 回収圧縮機の電気系トラブルと対処 1

レベル計が不完全な状況下で、別の問題が発生した。回収圧縮機の電源系の故障である。回収圧縮機自体は 2017 年度末に更新した新しい装置であり、今回のトラブルが生じるまで問題なく動いていた。8 月 25 日に運転中の回収圧縮機が突然停止した。電気系の不具合によるものである。大電流が流れ、スター用電磁接触器が溶着し、動かなくなった(図⑥)。なぜ大電流が流れ、溶着してしまったかは現時点では不明である。電磁接触器を新品に交換したら動くようになった。

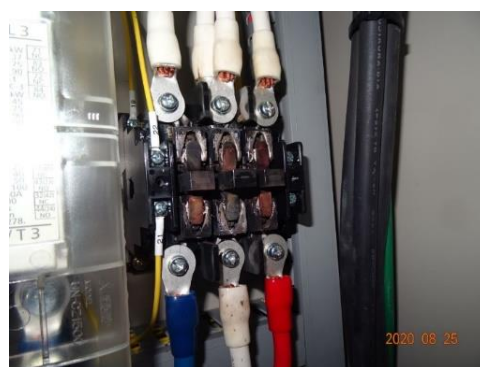


図 6 回収圧縮機の電磁接触器の溶着

3.3 ガスホルダーのレベル計のトラブルと対処 2

3.3.1 トラブルの発見と原因

10 月 12 日の朝に異常が発見された。レベル計が異常値を示している。ガスホルダーを実際に見ると最大まで膨らんでいる。また、長尺容器の圧力が最大になっている。回収圧縮機も複数のエラーメッセージを出している。

調査の結果、どうしてこのような事態になったか判明した。レベル計の測長テープが何らかの理由で切れた(図 7 を参照。測長テープのガイド管(②)から測長テープが出ていない)。切れた結果、測長テープはレベル計に巻き込まれ、レベル計が、回収圧縮機が動き出すレベル以上の数値を常に示すことになる。このことは、実際のガスホルダーのガスの量が減っても回収圧縮機を止める信号を出さないことも意味する。このため、回収圧縮機が連続して長時間動いた。

ガスホルダー内は通常正圧であり、大気圧より少し高い状態に保持されている。回収圧縮機が動くと、膨らんでいた風船は潰れていく。レベル計が一定値以下に達すると止まるはずであるが、今回のケースではレベル計が機能しないため止まらない。中にあるヘリウムガスをほぼ長尺容器に移送し、ガスホルダー内が負圧になると、2.3 で説明したブリザーバルブから大気を吸い込み続けた。このため今回のレベル計の故障によっても、ネオプレン風船の損傷は生じなかった。

レベル計の故障に伴う回収圧縮機の連続運転により、大量の空気が長尺容器に貯めこまれた。レベル計の故障前は、長尺容器の圧力は 7~8 MPa 程度であったが、14 MPa 以上まで上がった。回収圧縮機は、出口側の圧力がある値を越えると止まるように設定されており、その設定数値に至ったことにより自動的に止まった。

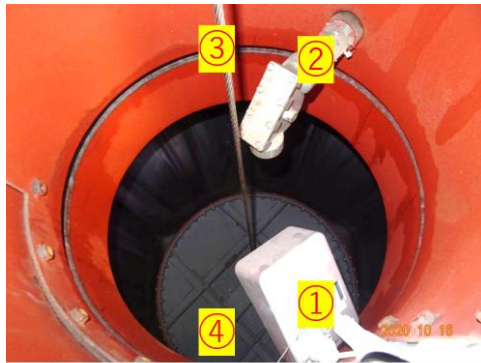


図7 ガスホルダー内部2

- ① 監視カメラ
- ② 測長テープのガイド管
- ③ 円盤を吊るワイヤ
- ④ 円盤

3.3.2 対処

[レベル計の再接続と監視カメラ]

レベル計が機能しなくなってしまったので、まずその対処を考える必要がある。切れてしまった測長テープを再接続した。再接続してもたわみは生じるため、常にレベル計が正確な値を示すわけではないが、目安にはなる。

測長テープが切れて、レベル計が異常値を示す可能性は今後もある。いずれ測長テープを新品に交換するとしても、別の手段で内部の情報を把握したい。そのため、ガスホルダー内を監視するためにネットワークカメラを設置した(図7)。ネットワークカメラを設置する前は、ガスホルダーの外についている梯子を登って点検扉を開けて、上から中を見る必要があった。カメラの設置により、ネット回線がつながる場所からガスホルダー内を監視できるようになった。

[低純度のヘリウムガスの処理]

全ての長尺容器内に、純度が55%程度の低純度のガスが占めてしまった。本センターの液化機は、純度が95%以上のヘリウムガスがないと継続的な運転は難しい。このままでは液化ができないので、まず長尺容器に貯まったガスの一部(60 m³の長尺容器数本分)を大気に放出した。空いた長尺容器に新たに回収された比較的純度の高いガスを貯めこみ、それを利用してヘリウム液化を行った。

純度が低めのガスを使えないか模索したが、我々の液化システムでは精製(不純物を取り除くプロセス)を継続するのが難しい。試しに、純度が低いガスも利用して液化を試みたが、精製のさいの液化空気を排出する電磁バルブに固形物が詰まり、運転継続が不可能になるトラブルも生じた。バルブのすき間を調節し、詰まりにはなんとか対処できたが、純度が低いガスを利用するには大きなリスクが伴う。

しかし、低純度とは言え55%のヘリウムガスをすべて大気放出することは、予算面で厳しいだけでなく、希少な資源であるヘリウムを失うことになる。そこで、低純度ガスの処理を、時間をかけて行うことにした。具体的には、新しく回収された純度の高いガスと、今回のトラブルで貯まった低純度のガスを混ぜ、継続的にヘリウム液化が行える純度のガスにし、そのガスでヘリウム液化を行う。純度が比較的高いガスが大量に必要なので、この作業にはどうしても時間がかかる。ガスを混ぜる量を計算し、純度を監視し、長尺容器内の低純度ガスを処理していった。後の話になるが、2021年3月中旬には、低純度ガスの処理はだいぶ進み、75%程度の長尺容器が利用可能になった。

3.4 回収圧縮機の電気系トラブルと対処 2

11月9日 回収圧縮機の電磁接触器の溶着が再度生じた。今回も電磁接触器を交換し、無事に動

くようになった。電磁接触器は、高頻度でスイッチのオンオフを行うのが望ましくない。ガスホルダーのレベル計の正確な表示範囲が狭いため、結果として回収圧縮機のスイッチのオンオフを高頻度で行っていた。今回の故障を受けてオンオフの頻度を下げる検討を始めた。

ガスホルダー内をセンタースタッフがモニターで監視し、膨らんだ時点でスイッチを押すことにした。しかし、このままだと、スイッチを押すため回収圧縮機のある部屋に行く必要がある。また監視カメラをかなりの頻度で見る必要がある。これを解決するために、スマートフォンから回収圧縮機の運転を開始・停止できるような仕組みを作った。

近年、ネットワーク越しにスイッチを押すことができる装置が安価に販売されている。SwitchBot もその一つであり、それを利用した。2.2 でも述べたが、レベル計には4つのマイクロスイッチがついている。(自動運転時の)回収圧縮機の運転と停止に対応するスイッチを SwitchBot で押すことにした。図8はレベル計の背面を開けて SwitchBot を取り付けた写真である。

元々ついていたカムのうち、HH と H のマイクロスイッチに対応するカムは取り外した。残りの2つはつけたままである。自動運転時の回収圧縮機の停止は、SwitchBot と元々ついていたカムとで、並列で行えるようにした。このセッティングによる回収の一連の流れは次のとおりである。

- ① スタッフがモニターでガスホルダーが十分に膨らんだことを確認する。
- ② スマートフォンを操作し、SwitchBot に命令を出す。
- ③ SwitchBot がレベル計内のマイクロスイッチを押して、回収圧縮機の運転を開始する。
- ④ 回収圧縮機の運転開始により、ガスホルダーからガスが減り、測長テープのたわみが解消され、レベル計が正確な値を示すようになる。
- ⑤ レベル計のカムが回転し、カムの凸部がマイクロスイッチを押して、回収圧縮機が停止する。

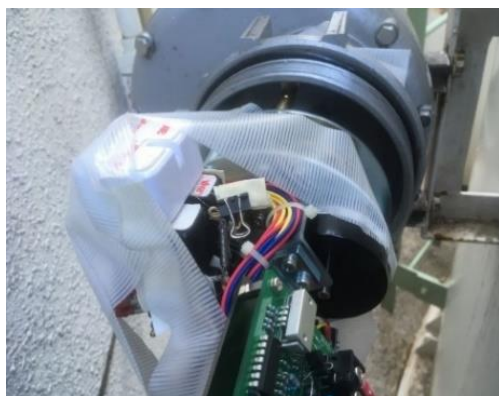


図8 レベル計内部背面

平日の日中は上記のような手順である。夜間や休日は、SwitchBot のスケジュール機能を利用し、一定時間ごとに回収圧縮機を運転した。

新しく組んだシステムを運用するにあたりいくつかの点で苦労した。スイッチを押す装置の機械的な接続で何度か失敗した。センターのネットワークの問題(Wi-Fi の不良)、ネットワークカメラに利用していたコンピュータが自動で再起動してしまう問題(設定変更で回避)、スイッチのネットワークサービスの不具合など、当初は想定していなかった問題が発生し、それぞれに対処する必要があった。トラブルに見舞われるたびに改善した結果、レベル計の修理が終わるまでの2ヵ月以上、ガスの回収をすることができた。

SwitchBot はあくまでも家庭用のデバイスであり、おそらく業務用に用いることを推奨されていない。当初、短期間だけ用いるつもりであったが、いくつもの事情が重なり、短くない期間を運用することになった。今回の報告は、同様な方法の推奨というわけではないことを断っておく。

3.5 回収圧縮機の電気系トラブルと対処 3

1月15日に回収圧縮機の電気系に3度目のトラブルが生じた。今回はスター用電磁接触器とデルタ用電磁接触器が溶着した。新品と交換したら無事復帰した。原因は業者が調査中である。

3.6 レベル計の交換修理

1月22日に、業者に依頼して、ガスホルダーのレベル計の主な消耗部品(測長テープ、スプリング等)を交換した。測長テープを巻き取るスプリング(コンストンスプリング)の劣化が、レベル計の動作不良の原因であった。スプリングが複数個所で裂けており(図9)、測長テープを巻き込むことができなくなった。部品を交換後、調整を行い、その後は無事に動いている。

2010年度末にガスホルダーの風船と同時に、レベル計の測長テープやスプリングを交換している。スプリングは消耗品であり、もっと早い時期の交換・メンテナンスが必要だったようである。



図9 レベル計のスプリング。左は装置についている状態。右は取り外しである。スプリングが裂けているのがわかる。

4. 同様のトラブルが起きた時の対策案

4.1 レベル計

今後も、レベル計が壊れる可能性はあり、対策を検討した。著者らは、利用していたガスホルダーのレベル計のトラブル例を知らなかった。ただ、他のヘリウム液化化施設において、ヘリウムガスを一時的に貯めておくガスバッグのレベル計がうまく働かなかった事例はあるようである。他のヘリウム液化施設のスタッフの方に意見を伺う機会もあった。

スプリングの不具合に関しては、この一年の経験から、今後は前兆がつかめると思う。気が付いた時に、早めに交換を手配すれば良い。測長テープの切断は、そうそう起きないとは思いますが、長尺容器内に大量の大気が入る対策はするべきである。以下にいくつかの対策案を記す。4.1.1はトラブルの可能性を下げるための対策で、4.1.2と4.1.3はトラブルが起きた時に被害を最小限に抑えるための対策である。

4.1.1 回収圧縮機運転開始・停止条件の変更

2系統レベル計を設置し、条件次第で回収圧縮機のオンオフを行うことで、片方のレベル計が故障した時の対策になる。また、ガスホルダー内の圧力が基準値以下の負圧になったら、回収圧縮機をオフにすれば、今回のような大量の空気の吸入を防げる。

4.1.2 長尺容器の運用

長尺容器の個々のバルブはすべて「開」状態で、配管によってつながっており、長尺容器内の圧力は等しい。ヘリウムガス量の管理や、長尺容器の容量を最大限に利用する上でも、このような運用のメリットはある。しかし、トラブル時を考えると、通常の回収に使う長尺容器と、一部の非常用の長尺容器と分けるのも一つの選択肢である。非常用としては、高圧状態(13~14 MPa程度)や低

圧状態(3 MPa 程度)でガスを貯めておく和良好的。

もし高圧ガス配管に漏れが生じ、ガスが大量に失われた時、高圧状態の長尺容器があれば、ガス漏れ箇所のチェックや、液化に利用することができる。また、今回のような空気が大量に混じってしまった場合にも、ある程度純度の高いヘリウムガスがあることは望ましい。同じく空気が大量にまじってしまった場合に、低圧状態の長尺容器があれば、ガスを捨てることなく新たなヘリウムガスを回収できる。

4.1.3 メールアラート

異常事態(「一定時間以上回収圧縮機が動き続ける」、「一定時間以上レベル計の値が変化しない」等)が生じたら、スタッフにメールを送信する。トラブルに早く気が付くことは重要である。

4.2 回収圧縮機

回収圧縮機のトラブルに関して、現状で原因が完全に分かっているわけではないため、その対策は難しい。交換部品をあらかじめ購入し、同じ個所が壊れた際にすぐに修理可能にした。ヘリウムガスの損失を最小限に抑えることができる。

予備の回収圧縮機があれば、今回のような事故の時や、回収圧縮機のオーバーホールの際にも役立つ。緊急時対応のためであり、吐出流量は少なくてもかまわない。吐出流量が少なければ、購入費用も低めで、サイズも小さいことから、比較的導入しやすい。次回のシステム更新時にはこの点も含めて検討したい。

5 おわりに

ガスホルダーのレベル計は 2020 年中に修理が行われるはずであったが、新型コロナウイルス感染症のため、修理が遅れることになった。1 月の修理以降、レベル計には問題は起きておらず、しばらくは安心だろう。回収圧縮機の電源に関しては現時点で不明なこともあるが、オンオフの回数が減り、スターとデルタ両方の電磁接触器を新品に交換したことから、すぐにトラブルが発生する可能性は低いと考えている。

回収圧縮機のトラブルによって、液体ヘリウム供給停止や供給制限を何度か行った。2020 年度は新型コロナウイルス感染症の影響により、学内の多くの液体ヘリウム利用者が実験を控えなければいけなかった。そのような中で、液体ヘリウムの供給停止・制限は、研究の進捗の遅れをまねいたと考えている。この場を借りてお詫びしたい。今までも寒剤の安定供給のためにセンタースタッフ一同努力をしてきたが、今後も気を引き締めて業務にあたる。

参考文献

[1] 「FT-1000 / FP-1000 | 26. スプリングバランス式液面計・サーボバランス式液面計 | 液面計測・制御機器 | 製品案内 | 東京計装株式会社」

URL: https://www.tokyokeiso.co.jp/products/level/26sb_tank/01/ft_fp/index.html

[2] 金子産業 official web site >> ブリザーバルブ

RUL: <http://www.kaneko.co.jp/product/ventilating/blizzard-valve/>

[3] 藤澤真士、金本真知、大熊哲 「大岡山キャンパスにおけるヘリウム液化システムの維持管理」 『東京工業大学 極低温研究支援センターだより』 No. 33 p.8

URL: <http://www.rcltp.titech.ac.jp/report/index.html>

4. センターからのお知らせ 1

液体 He の Web による注文の方法

極低温研究支援センター・大岡山 藤澤真士

注文の手順は以下の通りです。

1. <http://www.rcltp.titech.ac.jp/user/> (学内のみ)に入ってください。
2. 研究室 ID: (例 001)とパスワード:(例 AbCDEf)を入力してログインしてください。
3. 「新規注文」をクリックします。
「新規注文_入力」画面に入ります。必要事項を記入して「確認する」ボタンを押してください。

記入項目

- 供給希望日(任意) … 記入しない場合、一番近い供給日とみなされます。
- 注文者(必須)
- 電話番号(必須)
- 支払経費名(任意) … 通常は法人運営費; 予算責任者と相談して下さい。
- 注流量(必須)
- 容器指定(任意) … 研究室にある容器に継ぎ足す場合は「継ぎ足す」を、それ以外は「新規」を選択して下さい。
- 容器番号(任意) … 「継ぎ足す」場合は記入して下さい。「新規」の場合でもご希望があれば記入して下さい。
- 容器タイプ(任意) … ご希望の容器タイプがありましたら選んでください。
- 内径(任意) … トランスファーチューブを挿入する場所の径です。分からない場合は、センタースタッフまで必ず相談して下さい。
- 流量計(任意) … ガスメーターの値を入力して下さい。入力しなくても注文はできますが、回収率の計算のために必要です。回収配管を利用している研究室は最新の数値を入力して下さい。
- 備考(任意) … 必要に応じて入力して下さい。できるだけ簡潔にご記入ください。

新規注文_入力 (センター大熊研究室)

注文情報を入力してください。

| | |
|-------------------------------------|---|
| 供給希望日 | <input type="text" value="yyyy / mm / dd"/> |
| 注文者 | <input type="text"/> (必須) |
| 電話番号 | <input type="text"/> (必須) |
| 支払経費名 | <input type="text" value="法人運営費"/> |
| 注流量 | <input type="text" value="100"/> リットル (必須) |
| 容器指定 | <input checked="" type="radio"/> 継ぎ足す <input type="radio"/> 新規 |
| 容器番号 | <input type="text"/> |
| 容器タイプ | <input type="radio"/> 研究室所有 <input type="radio"/> HELIOS100 <input type="radio"/> STRATOS <input checked="" type="radio"/> MVE110 <input type="radio"/> RH <input type="radio"/> MVE60 <input type="radio"/> HELIOS50 <input type="radio"/> HELIOS30 <input type="radio"/> IC <input type="radio"/> 不明 <input type="radio"/> 12 or 12.7 <input type="radio"/> 12 <input checked="" type="radio"/> 12.7 <input type="radio"/> 9.5 <input type="radio"/> 無指定 |
| 内径(mm) | <input type="text"/> |
| 流量計1 | <input type="text" value="10.0"/> m ³ (南実験棟3_2F) |
| 流量計2 | <input type="text" value="20.0"/> m ³ (南実験棟5_STM) |
| 流量計3 | <input type="text" value="30.1"/> m ³ (南実験棟5_Dilution) |
| 流量計4 | <input type="text" value="30.4"/> m ³ (南実験棟5_Vessel) |
| 備考 | <input type="text"/> |
| <input type="button" value="確認する"/> | |

[センター大熊研究室メニューへ](#)

4. 「確認する」ボタンを押すと「新規注文_確認」画面に移動します。修正する場合は「再入力」ボタンを、注文を確定する場合は「確認した」ボタンを押してください。

5. 「確認した」ボタンを押すと「新規注文_完了」に移動します。同時に注文受理のメールが配信されます。容器指定が「継ぎ足す」の場合は、これで注文が完了します。供給日の 11 時までには、容器を液化室に運んでください。容器指定が「新規」の場合は、容器が準備できるかを液化室まで必ず問い合わせてください。電話(内線 3253)か直接液化室に出向いて、口頭で確認をお願いします。

補足

- 1 回の注文で複数の容器の指定はできません。必要な容器の本数だけ注文を繰り返してください。
- 通常、供給日の 15 時には全ての容器への充填は終わっています。15 時より早い時間に受け取りを希望する場合、備考欄に時間帯を記入してください。時間帯を指定した場合は、必ず液化室に事前にご確認ください。通常の供給日(月、木)以外の受け取り希望の場合も、備考欄にご記入ください。

センターからのお知らせ2

低温実験で用いる物品の貸し出し・提供を行っています。そのうち実験材料の一部はセンター1階に設けたストック用スペースに配置し、多くのユーザーの方々に利用していただいております。センターでは今後も、低温技術のサポート（物品や材料の使い方の指導）や最新の情報提供をとおして学内利用者の研究を支援してまいります。センターでストックを希望される物品がありましたらお知らせ下さい。なお、これらの物品に関する説明は、毎年4月に開催する「低温技術講習会」で行います。

備品

- 1 液体ヘリウム容器 30リットル 1台, 50リットル 1台, 60リットル 1台, 100リットル 17台, 110リットル 10台, 120リットル 1台, 250リットル 1台（胴直径820φ, 高さ1620mm）
- 2 液体窒素容器 100リットル 1台, 10リットル 1台, 2リットル 1台
- 3 ヘリウムガス回収用バルーン 6つ
- 4 ヘリウムリークディテクター ターボポンプ内蔵・ポータブル型
○ターボポンプが破損すると修理には多くの費用がかかります。利用者の皆様におかれましては、取り扱いには一層注意を払われますようお願い致します。
- 5 酸素モニター（ポータブル型）
○短期間に限り貸し出しできます。
- 6 リフター
○クライオスタットのインサートや超伝導マグネットのリフト用

消耗品・その他の貸し出し物品

- 1 各種線材
 - (1) 超伝導線
NbTi(+Cu)線 (SUPER SWU7A) 0.10 φ (SUPER SWU25A) 0.35 φ
○コイル, 極低温での導線, ヘリウム液面計の製作等に使用。
 - (2) マンガン線 (0.2 φ) 15 Ω/m 1巻 (0.1 φ) 60 Ω/m 1巻
○電気抵抗大きく熱伝導小さい。室温部から冷却器内への導線, 極低温でのヒーターとして使用。
 - (3) インジウム線 (1 φ)
○極低温でのシール用。
 - (4) 金線 (0.1 φ)
○試料からの配線用導線等に使用。
- 2 ケーブル類
 - (1) 極低温用超極細キュプロニッケル同軸ケーブル

(外径 0.65 ϕ ; 50 \pm 5 Ω)

- (2) ジュンフロン高周波用同軸ケーブル (導体軟銅線)

DTR403P (トライアックス外径 2.93 ϕ ; 50 \pm 2 Ω)

DAS401 (外径 0.61 ϕ ; 46 Ω)

- (3) 極低温用キュプロニッケル 2 芯より線 (より線外径 0.52 ϕ)

- (4) りん青銅ツイストペアシールド線 CW5584 (芯線径 0.08 ϕ)

3 低温用接着剤

- (1) スタイクキャスト (エポキシ系) 1266

○無色透明。極低温における非金属構造材として、加工可。接着剤として、金属パイプとの気密シールもデザインに注意すれば可。急冷注意。

- (2) スタイクキャスト 2850GT

○黒色、加工不可。極低温部での導線の気密シール、熱膨張率小さく金属との接着にも適す。

- (3) GE7031 ワニス (フェノール系)

○導線の熱アンカーや温度計等の固定に用いる。アセトン等で取り外し可 (十分な量在庫してあります)。

- (4) 2 液混合型導電性ペースト

4 温度計センサー

- (1) ゲルマニウムセンサー (1.4-100 K 較正済)

- (2) プラチナセンサー (100 Ω 未較正)

以上各 1 個 (貸し出し)

- (3) RuO₂ 抵抗

・希釈冷凍機温度域用 (0.05-7 K 較正済)

・角型チップ抵抗 (未較正)

(ALPS 社製造中止 ; 同等の KOA 社製 RCL シリーズ)

470 Ω , 1k, 2k, 4.7 k Ω 多数保有

・RuO₂ 筒状温度センサー (Scientific Instruments 社製 600 Ω) 1 個 (貸し出し)

○温度・磁場特性は極低温センサー日より No.7 本文「大熊研」参照。

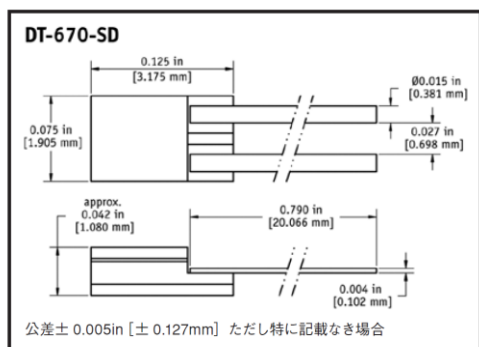
- (4) カーボン抵抗 (松下 47, 100, 220 Ω)

- (5) 金+0.007%鉄-クロメル線 (0.2 ϕ)

○室温から液体ヘリウム温度まで測定可能な熱電対。

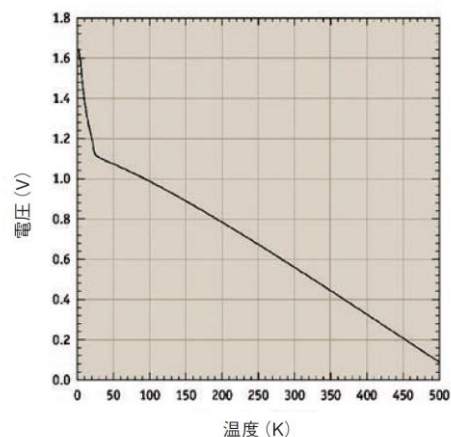
- (6) シリコンダイオードセンサー (1.4-325 K 較正済)

○従来のものは、電極用の足がとれて使用不能となりました。取り扱いには十分注意をお願い致します。新しいもの (DT-670) を購入しました。



(東陽テクニカ社カタログより)

DT-670 ダイオード電圧曲線 (ティピカル)



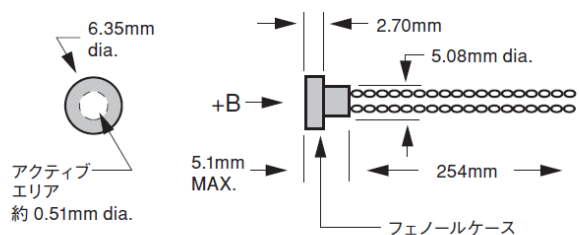
5 磁場センサー (貸し出し)

InAs ホール素子 (F. W. BELL 社製 BHA921 型) 1 個

使用範囲 0~15 Tesla (較正は 3 T まで) ; 4.2~373 K

動作電流 100 mA 感度 0.988 mV/kG

形状 Axial 型 直径 6.3 φ × 厚さ 5 mm



(東陽テクニカ社カタログより)

6 マイクロピンコネ

クター (金メッキ)

○小型で自由な長さ切り出し可。1 K 以下でも使用可能。

- 7 ヘリウム汲み出し用 (加圧用) バレーボール風船 (2 号)
- 8 ヘリウム容器排気用オペレーター (東理社, MVE 社, ウェシントン社, エアリキッド社, クライオサーモ社製容器用)
- オスねじがついていて引っ張り出すタイプ。
- 9 ヘリウム容器汲み口用ゴムチューブ (径はお問い合わせ下さい)
- 1 0 ガラスデュワー用ラテックスゴム (寸法はお問い合わせ下さい)
- 1 1 カプトン (マイラー) テープ
- 1 2 ポリイミドチューブ (外径 0.2 から 5.0 φ [肉厚は 40-60 μ m] まで各種 ; 寸法はお問い合わせ下さい)
- 極低温, 高温で使用可。肉薄で配線の導入・絶縁に便利。
- 1 3 被膜剥離剤 (フクゾール)

- 1 4 肉薄引抜ステンレスパイプ, キュプロニッケルパイプ (寸法はお問い合わせ下さい)
- 1 5 NW クランプ, フランジ, ティー, レデューサー, フレキホース類 (貸し出し)
- 1 6 銅管継ぎ手類
- 1 7 スウェージロック
- 1 8 高圧ガス配管漏れ検出液
- 1 9 簡易型携帯用ヘリウムガス漏れ検出器 (→)



(約 95g; LD239 型 : ジーエルサイエンス社カタログより)

その他, センター研究室内にも低温実験でよく用いる材料, 回路部品, 真空部品や工具類がありますので, 緊急に必要な方はご相談下さい。

5. 研究報告

物理学系田中研究室 令和 2 年度研究報告

物理学系 田中研究室

<http://www.lee.phys.titech.ac.jp/~tanakalb/tanakalb.html>

$S = 1/2$ 擬一次元反強磁性体 $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ の結晶構造と低温磁性

渡辺一充, 栗田伸之, 田中秀数

1 はじめに

2006 年に A. Kitaev により提案された蜂の巣格子に $S = 1/2$ のスピンの局在し、蜂の巣格子における 3 種類の相互作用のリンクでそれぞれ異なる方向に Ising 的な相互作用する Kitaev 模型について研究が盛んに行われている [1, 2]. 2 次元量子多体系模型にも関わらず基底状態が量子スピン液体となることが厳密に求まり、電子スピンの 2 種類のマヨラナ粒子で記述されることで注目されている. Kitaev 模型の候補物質の 1 つである $\alpha\text{-RuCl}_3$ の近年の実験では、熱ホール伝導度 κ_{xy}/T が温度と磁場によらず量子化値の半分の値で一定となる振舞いが観測された. これは熱を運ぶ粒子が電子の半分の自由度をもつマヨラナ粒子であることを示しており、マヨラナ粒子の初の実験的な観測例として非常に注目されている [3]. $\alpha\text{-RuCl}_3$ について、様々な手法で研究が進められているが、相互作用について十分なコンセンサスは得られていない [2, 4, 5].

実際の物質は、磁性イオン – 陰イオン – 磁性イオンの結合角が正しく 90° ではないために、Kitaev 相互作用に Heisenberg 相互作用を加えた Kitaev-Heisenberg 模型で記述される場合が多い. 三角格子 Kitaev-Heisenberg 模型のゼロ磁場での基底状態では Kitaev 項と Heisenberg 項の競合により、 \mathbb{Z}_2 vortex crystal など様々な相が存在することが理論計算より報告されている [6, 7]. しかし、三角格子

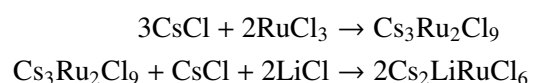
Kitaev-Heisenberg 模型のモデル物質の報告例はなく、実験的な理解が得られていない.

我々の研究室では $\alpha\text{-RuCl}_3$ と同じく磁性イオンが Ru^{3+} で Kitaev 相互作用を有することが期待され、スピン $1/2$ 三角格子反強磁性体と考えられる $\text{Rb}_2\text{LiRuCl}_6$ に注目し、物質探索を行った [8, 9]. その結果、 $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ の純良で大型の単結晶育成に成功した. 本稿では、我々が初めて合成した $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ の結晶構造及び磁気特性について報告する.

図 1 に $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ の結晶構造を示す. $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ の空間群は $P6_322$ で、結晶構造は八面体 RuCl_6 と LiCl_6 が面を共有して c 軸方向に連なる鎖状構造である. このとき、鎖は図 1 のように A, B, C の 3 種類に分類される. 鎖 B, C は原子配置が $c/2$ ずれているだけで等価であり、 Ru^{3+} と Li^+ はおおよそ秩序化し交互に配置している. 一方、鎖 A では Ru^{3+} と Li^+ の占有率がそれぞれ 50 % と原子配置が無秩序化している. この結晶構造の部分無秩序化は三角格子イジングスピン反強磁性体 (AFIMTL) で観測される磁気構造の部分無秩序化に類似しており、AFIMTL における交換相互作用, up スピン, down スピンをそれぞれクーロン力, Ru^{3+} , Li^+ に置き換えることで解釈することが出来る.

2 単結晶育成

$\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ の合成は以下の化学反応式に従い、2 段階で行った .



中間物質として $\text{Cs}_3\text{Ru}_2\text{Cl}_9$ を作成することで、より純良で大型の単結晶が得られる. 単結晶育成は垂直

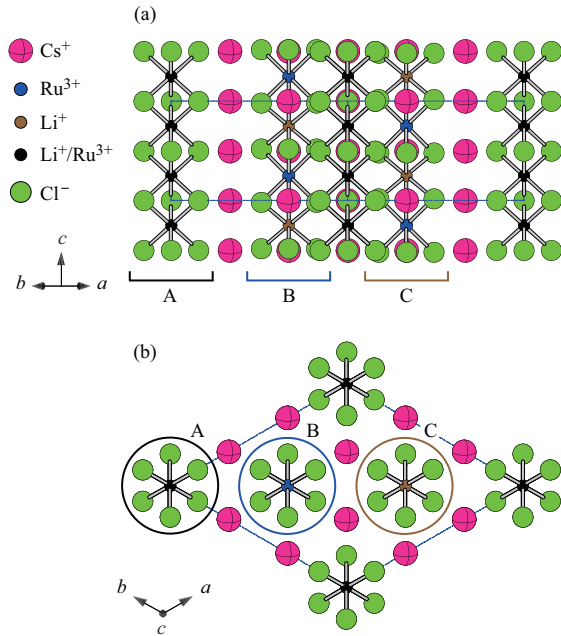


図1 Cs₂LiRuCl₆ の結晶構造. (a) は [110] 方向から, (b) は *c* 軸方向から見た構造. 青の点線は単位格子を表す.

ブリッジマン法で行った. 石英管に封入した試料が炉心で融解し, 徐々に炉心から離れることで石英管の先端部分から結晶化が進み単結晶が得られる. 得られた単結晶は *c* 軸を含む面で容易に劈開する.

3 ESR 測定

電子スピン共鳴測定 (ESR) は東北大学金属材料研究所野尻研究室のテラヘルツ電子スピン共鳴装置 (Terahertz electron spin resonance apparatus: TESRA-IMR) を用いて行った. サンプルホルダーに参照試料として $g = 2.004$ の DPPH をグリースでセットした. 図2に $T = 50$ K における ESR 測定から得られた常磁性共鳴の周波数-磁場ダイアグラムを示す. 得られた $H \parallel c$, $H \parallel ab$, DPPH の常磁性共鳴から磁場が *c* 軸に平行な場合と垂直な場合の g 値はそれぞれ $g^{\parallel} = 2.72$, $g^{\perp} = 1.50$ と求められた.

図3に g 値の実験値と理論計算の結果の比較を示す. ここで g 値の理論計算は文献 [10] の FIG. 13(a) の δ/λ' が -1 から 0 の部分を拡大したものである. 得られた g 値から $(\delta/\lambda', k) = (-0.54, 0.96)$ が得

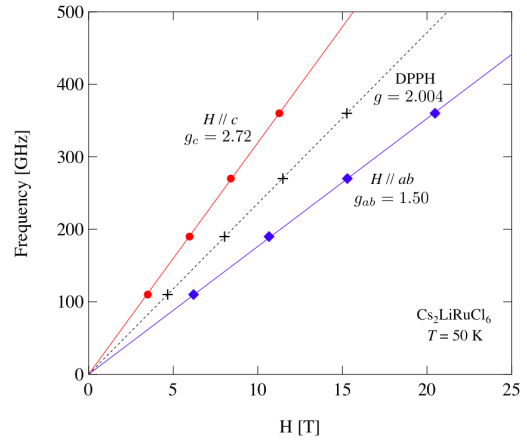


図2 Cs₂LiRuCl₆ の $T = 50$ K における ESR 測定から得られた常磁性共鳴の周波数-磁場ダイアグラム.

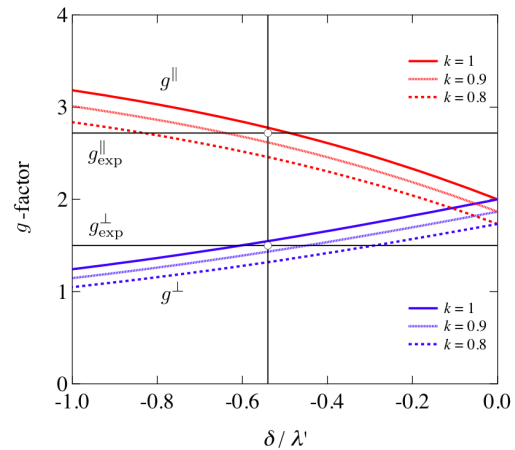


図3 g 値の理論計算と実験結果の比較. g 値の理論計算は文献 [10] の FIG. 13. (a) の δ/λ' が -1 から 0 の部分を拡大したものである.

られる. δ は結晶場理論における状態 E_g と A_{1g} のエネルギー差を表しており, 八面体 RuCl_6 が [111] 方向に縮んだ時は $\delta > 0$, 伸びた場合は $\delta < 0$ となる. $\delta/\lambda' < 0$ は Cs₂LiRuCl₆ において八面体 RuCl_6 が [111] 方向に伸びていることと一致する. 減少因子 k は Cl^- の p 軌道と Ru^{3+} の d 軌道の混成によって定まることから Cs₂LiRuCl₆ と α - RuCl_3 でおおよそ一致する. 文献 [10] では α - RuCl_3 は $(\delta/\lambda', k) = (0.77, 0.95)$, $(1.18, 0.83)$ の状態のどちらかが実現していると考えられている. Cs₂LiRuCl₆ の k の値が 0.96 と定まったことから α - RuCl_3 は $(\delta/\lambda', k) = (0.77, 0.95)$ の状態が実現していると考えられる.

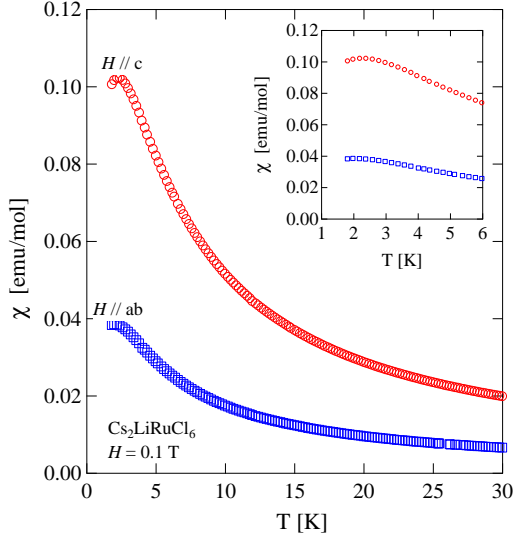


図4 Cs₂LiRuCl₆ の磁化率の温度依存性. 挿入図は最低温度付近を拡大した図を示している.

4 磁化測定

磁化測定には SQUID 磁束計 MPMS-XL (Quantum Design 社) を用いた. 図 4 は, 印加磁場 0.1 T で測定した 1.8 K までの磁化率の温度依存性である. $T = 2$ K 付近にブロードなピークが見られる. これは低次元反強磁性体の特徴的な性質であり, 反強磁性的な短距離秩序の発達が要因と考えられる.

強磁場磁化測定は東北大学金属材料研究所野尻研究室で行なった. 得られた磁化曲線を MPMS の測定結果で較正したものを最終的な結果とした. 図 5(a), (b) はそれぞれ 0.4 K で測定した $H \parallel c$ 方向, $H \parallel ab$ 方向の磁化過程である. 飽和磁化に達したことで磁化曲線の傾きは緩やかになり, 飽和磁場以上における磁化の直線的な増大は Van-Vleck 常磁性の寄与である. 線形フィッティングから Van-Vleck 常磁性 $\chi_{\text{VV}}^c = 8.49 \times 10^{-3}$ emu/mol, $\chi_{\text{VV}}^{ab} = 1.31 \times 10^{-3}$ emu/mol と飽和磁化 $M_s^c = 1.14 \mu_B/\text{Ru}^{3+}$, $M_s^{ab} = 0.62 \mu_B/\text{Ru}^{3+}$ が得られる. また, 磁化の磁場 2 階微分 d^2M/dH^2 から, 飽和磁場 $H_s^c = 4.35$ T, $H_s^{ab} = 6.90$ T が得られる. α -RuCl₃ では全スピンを保存しない Kitaev 項が大きいいため, 磁化の磁場微分は飽和磁場以上で緩やかに減少する [10]. Cs₂LiRuCl₆ の飽和磁場での磁化の異常は α -RuCl₃

に比べて鋭く, 磁化の磁場微分は飽和磁場で大きく減少していることから, Heisenberg 項に比べて Kitaev 項は小さいことが考えられる.

図 5(c) に Van-Vleck 常磁性の寄与を補正し, g 値で規格化した磁化曲線を示す. 磁化曲線の形状に大きな違いは観測されないことから, 磁化の異方性は主に g 値の異方性に由来し, 相互作用の異方性は小さいと考えられる. 図 5(c) の縦軸は磁化を飽和磁化 $g\mu_B S$ で割った値に等しいが, 飽和磁場以上でその値は 1 に達していない. この要因として, 原子配置が無秩序化した鎖 A において, Ru³⁺ が鎖内で部分的に隣接し, 強い反強磁性的な相互作用によって非磁性の singlet を形成したことが考えられる.

図 5(c) の点線は $S = 1/2$ 一次元 Heisenberg 反強磁性体の磁化過程の理論曲線を示している [11]. 飽和磁場 gH_s の平均から鎖内の相互作用 $J/k_B \approx 3.7$ K が得られる. 鎖内の相互作用が $J/k_B \approx 3.7$ K の時, $S = 1/2$ 一次元 Heisenberg 反強磁性体の磁化率と比熱 C/T の短距離秩序に由来するブロードなピークの温度の理論値は $T_{\text{max}}^X = 0.64J/k_B \approx 2.4$ K, $T_{\text{max}}^{C/T} = 0.31J/k_B \approx 1.1$ K となる [12, 13]. 磁化率と後述する比熱の温度依存性について, ピークの温度が $S = 1/2$ 一次元反強磁性体の理論計算とよく一致することや磁化曲線が $S = 1/2$ 一次元反強磁性体の理論曲線と類似していることから, Cs₂LiRuCl₆ は Heisenberg 模型に近い $S = 1/2$ 擬 1 次元反強磁性体で記述されると考えられる.

5 比熱測定

比熱測定は PPMS (Quantum Design 社) を用いた緩和法により行った. $H \parallel c$ 方向に磁場を印加して, ³He オプションを用いて 10 K から最低温度 0.36 K まで測定を行った. 図 6 にゼロ磁場下での測定結果を示す. 比熱 C を温度 T で割った C/T は $T = 1.00$ K で短距離秩序による広い山を持ち, 転移温度 $T_N = 0.48$ K で反強磁性転移に起因するピークを示す. 図 6 の緑線は 7 K ~ 10 K の範囲で $C_{\text{ph}}/T = \alpha T^2$ を用いてフィッティングした結果である. 全比熱から格子比熱を引くことによって磁気

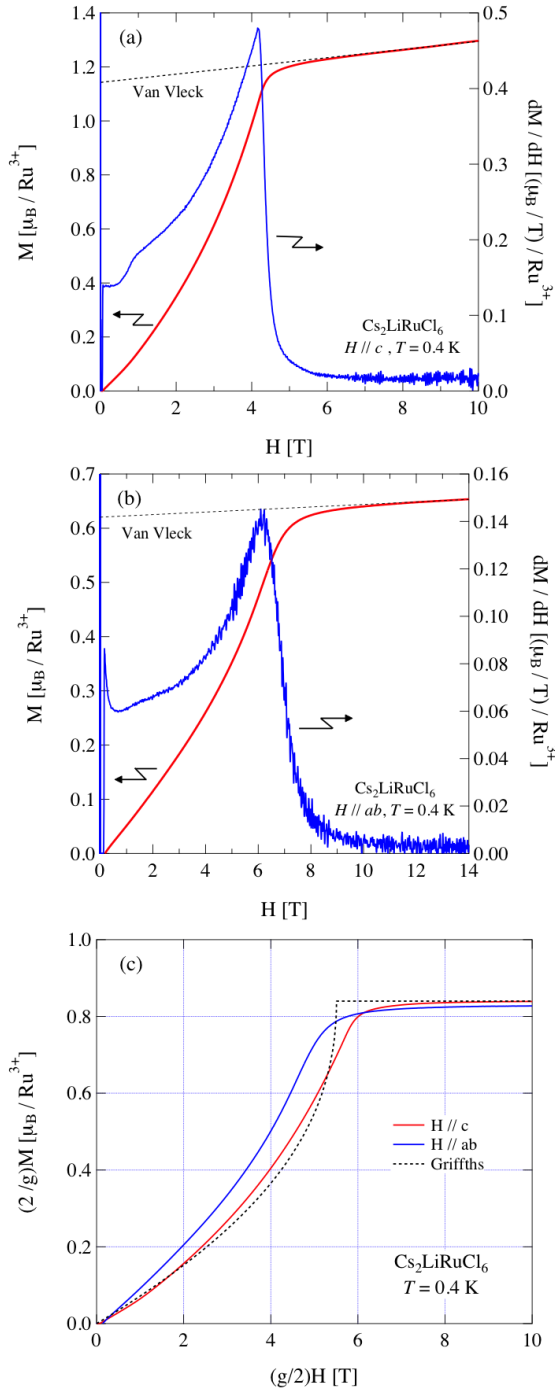


図5 $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ の磁化過程. (a) は $H \parallel c$ 方向, (b) は $H \parallel ab$ 方向の測定結果. 点線は高磁場領域から評価される Van-Vleck 常磁性の寄与を示している. (c) は Van-Vleck 常磁性の寄与を補正し, g 値で規格化した結果. 点線は $S = 1/2$ 一次元 Heisenberg 反強磁性体の磁化過程の理論曲線を 0.84 倍したものを示している [11].

比熱を求めることができる. 図6の青マーカーは磁気比熱 C_{mag}/T を温度で積分した結果である. エン

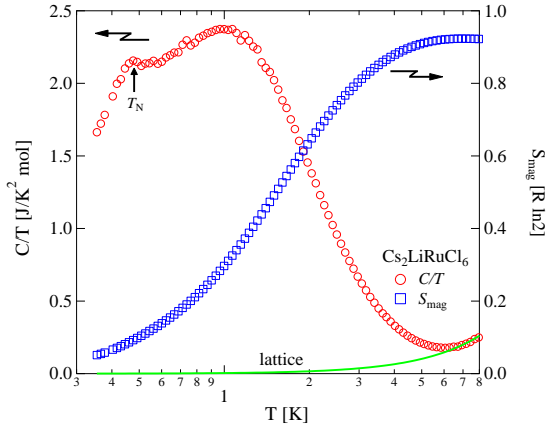


図6 $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ のゼロ磁場下での比熱 C/T の温度依存性. 右軸は磁気エントロピーの温度依存性を示しており, 緑の実線は T^3 に比例するとした格子比熱である.

トロピーは高温で $S_{\text{mag}} \sim 5.7 \text{ J/K mol}$ に十分に近づくことから, 有効スピンは $S = 1/2$ であると確認できる.

図7に $H \parallel c$ 方向に磁場印加時の比熱の温度依存性を示す. 図7の矢印は転移温度 $T_N(H)$ を示している. $H \leq 3 \text{ T}$ では磁場の増加に伴って, 転移温度 $T_N(H)$ は上昇し, λ ピークは大きくなる. $H \geq 3 \text{ T}$ では磁場の増加に伴って, 転移温度 $T_N(H)$ は急激に減少し, λ ピークは小さくなる. 図8に比熱測定から得られた相図を示す. 低磁場領域における $T_N(H)$ の上昇は古典計算からも報告されており, 次のように解釈することが出来る. 擬一次元 Heisenberg 反強磁性体の Neel 状態について, ゼロ磁場ではハミルトニアンは等方的でスピン揺らぎは全方位回転を許すが, 磁場を印加することでスピン揺らぎは磁場に対して垂直な平面内の回転に制限される. 磁場によって自由度が減るため, 低磁場領域において $T_N(H)$ は上昇する [14, 15].

6 まとめ

本研究では $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ の結晶構造と磁気特性を明らかにした. $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ の結晶構造は八面体 RuCl_6 と LiCl_6 が面を共有して c 軸方向に連なる鎖状構造である. 結晶構造の部分無秩序化が観測され,

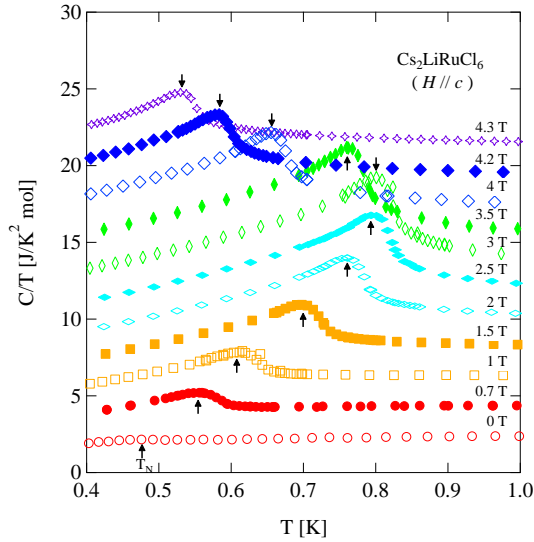


図7 $H \parallel c$ 方向に磁場印加時の $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ の比熱 C/T の温度依存性. 矢印は転移温度 $T_N(H)$ を示している. 磁場の増加ごとに上方にシフトしている.

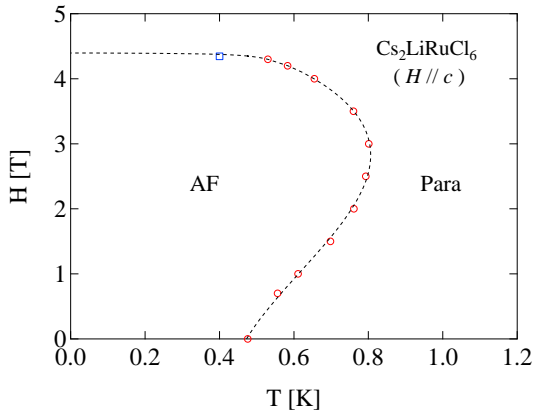


図8 $H \parallel c$ 方向に磁場印加時の $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ の相図. 赤マーカーは比熱 C/T の温度依存性, 青マーカーは高磁場磁化測定から得られた結果. 点線はガイド線である.

鎖は A, B, C の 3 種類に分類される. ESR 測定から $g^{\parallel} = 2.72$, $g^{\perp} = 1.50$ が得られた. 磁化測定と比熱測定の結果から $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ は Heisenberg 模型に近い $J/k_B \approx 3.7$ K の $S = 1/2$ 擬 1 次元反強磁性体で記述され, $T_N = 0.48$ K で反強磁性転移を示すことが明らかになった. $H \parallel c$ 方向の相図の全体像が得られ, 低磁場領域における $T_N(H)$ の上昇が観測された. 本研究は文献 [16] に掲載されている. ご覧頂ければ幸いです.

参考文献

- [1] A. Kitaev, Annals of Physics. **321**,2 (2006)
- [2] Y. Motome and J. Nasu, J. Phys. Soc. Jpn. **89**, 012002 (2020), and references therein.
- [3] Y. Kasahara, T. Ohnishi, Y. Mizukami, O. Tanaka, S. Ma, K. Sugii, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, Nature **559**, 227 (2018).
- [4] T. Suzuki and S. Suga, Phys. Rev. B **97**, 134424 (2018).
- [5] P. Laurell and S. Okamoto, npj Quantum Mater. **5**, 2 (2020), and references therein.
- [6] M. Becker, M. Hermanns, B. Bauer, M. Garst, and S. Trebst, Phys. Rev. B **91**, 155135 (2015).
- [7] I. Rousochatzakis, U. K. Rossler, J. van den Brink, and M. Daghofer, Phys. Rev. B **93**, 104417 (2016).
- [8] G. Jackeli, and G. Khaliullin, Phys. Rev. Lett. **102**, 017205 (2009).
- [9] G. Meyer and E. Dietzel, Rev. Chim. Miner. **16**, 189 (1979).
- [10] Y. Kubota, H. Tanaka, T. Ono, Y. Narumi, and K. Kindo, Phys. Rev. B **91**, 094422 (2015).
- [11] R. B. Griffiths, Phys. Rev. **133**, A768 (1964).
- [12] D. C. Johnston, R. K. Kremer, M. Troyer, X. Wang, A. Klümper, S. L. Bud'ko, A. F. Panchula, and P. C. Canfield, Phys. Rev. B **61**, 9558 (2000).
- [13] A. Klümper, Eur. Phys. J. B **5**, 677 (1998).
- [14] W. J. M. de Jonge, J. P. A. M. Hijmans, F. Boersma, J. C. Schouten, and K. Kopinga, Phys. Rev. B **17**, 2922 (1978).
- [15] A. M. C. Tinus, F. Boersma and W. J. M. de Jonge, Phys. Lett. **86A**, 300 (1981).
- [16] K. Watanabe, N. Kurita, H. Tanaka, H. Sugiyama, H. Uekusa, I. F. Diaz-Ortega, and H. Nojiri, Phys. Rev. B **103**, 064419 (2021).

赤外レーザー分光法によるパラ水素結晶内のCH₃Fによって誘起された水素振動遷移の偏光特性の研究

理学院 物理学系 金森研究室 中井川晃

HP: <http://www.molec.ap.titech.ac.jp>

【序】パラ水素結晶は六方最密充填構造をとることが知られており、この中にごく少数のCH₃Fをドープした場合、CH₃Fの12個の最近接サイトには n 個のオルト水素と $(12-n)$ 個のパラ水素が配置される。これらの水素分子とCH₃F分子をまとめてCH₃F-(*ortho*-H₂) _{n} クラスターと呼んでいる。(Fig.1参照) CH₃F-(*ortho*-H₂) _{n} クラスターのパラ水素の振動遷移(Q₁(0))は本来禁制であるがCH₃Fやオルト水素によって誘起されることで観測可能となり、FTIRを用いた研究[1]によって複数のピークが存在することが知られている。

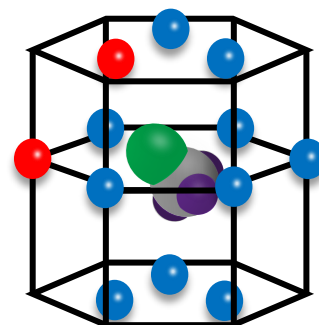


Fig.1 n 個のオルト水素(赤)と $(12-n)$ 個のパラ水素(青)から成るCH₃F-(*ortho*-H₂) _{n} クラスター(図は $n=2$)

我々はこれまでにパラ水素のQ₁(0)ピークの分裂についてCH₃F-(*ortho*-H₂) _{n} クラスターに含まれるオルト水素の数 n によるものであることをポンプ-プローブレーザー分光を用いて明らかにしている[2]。一方で同じオルト水素の数を持つCH₃F-(*ortho*-H₂) _{n} クラスターから複数のQ₁(0)ピークが生じていることも確認しており、この分裂については不明な点が多く残されている。これを解決するために今回我々はQ₁(0)ピークの偏光特性に着目し実験的研究を行った。Q₁(0)ピークはそのピークを生じるパラ水素とCH₃Fによる誘起の仕方によって異なる角度で振動していることが予想されるため、未帰属なピークの性質の解明につながることを期待される。

【方法 (実験・理論)】測定に用いる結晶は*para*-H₂ガス(*ortho*-H₂: ~1000ppm)にCH₃Fを20ppm混入したものを、2Kに冷却した基板の上に吹き付け、その後7Kでアニーリングして生成した。測定には2.4 μ m帯のDFBレーザー(TOPTICA、DL100DFB)を使用した。結晶を通過する前に波長板と偏光子を用いることで結晶に入る時のレーザーの偏光角を設定し、複数のレーザーの偏光角でのスペクトルを取得することで偏光依存性の測定を行った。

【結果・考察】レーザーの偏光角を基板に対しs偏光で入射した場合とp偏光で入射した場合のスペクトルがFig.2である。この図から同じ n のクラスターから発生するピーク間に強度に対して異なる偏光依存性が確認できる。Fig.3は $n=0$ のクラスター、すなわち、最近接サイトにパラ水素のみが存在する場合の三本のピークの偏光角度依存性を示している。この角度依存性はCH₃Fによって誘起されたパラ水素の振動方向

の違いを表していると考えられる。パラ水素結晶中の CH_3F の C-F 伸縮振動遷移の偏光依存性の配向の解析に用いられたモデル関数[3]を用いてフィッティングを行い、各ピークの振動方向を求めることを試みた。その結果、 $n=0$ の三本のピークは結晶の c 軸に対して波数の低い順にそれぞれ $70(2)^\circ$ 、 $20(1)^\circ$ 、 $87(5)^\circ$ となり、これらが 2 原子分子の配向角に対応すると考えられる。

一方でパラ水素の $Q_1(0)$ ピーク群のうち同じ n を持つクラスターから発生しているピークは最大で三本しか観測されていない。これを説明するために我々は $\text{CH}_3\text{F}-(ortho\text{-H}_2)_n$ クラスタを、 CH_3F のある層、 CH_3F の上にある層、 CH_3F の下にある層の三つに分け、それぞれの層にあるパラ水素が異なるピークを発生させている、というモデルで考えてきた。しかし今回得られた各ピークの配向角を CH_3F が作る電場から説明するために従来のモデルを修正する必要性が高まった。そのため結果を説明するためのモデルを現在新たに構築している。

【参考文献】

- [1] K. Yoshioka *et al.* *J. Chem. Phys.* **119**, 4731 (2003)
- [2] 京都, 第17回分子分光研究会, F15(2017)
- [3] H. Kawasaki *et al.* *J. Chem. Phys.* **144**, 184306 (2016).

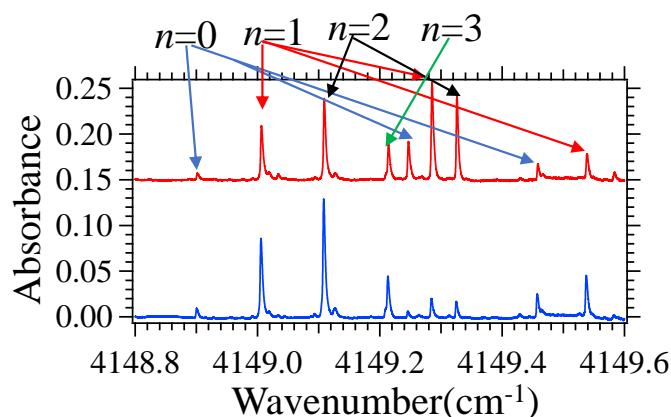


Fig.2 レーザーの偏光角が p-偏光 (赤, 上側)と s-偏光(青, 下側)の時のパラ水素の振動遷移のスペクトル, 上側の数字は発生元の $\text{CH}_3\text{F}-(ortho\text{-H}_2)_n$ クラスタを表す。

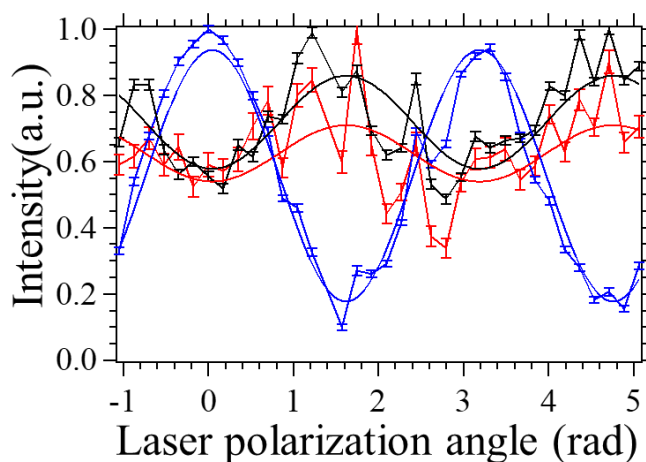


Fig.3 $\text{CH}_3\text{F}-(ortho\text{-H}_2)_0$ クラスタから発生する三本のピーク(赤: 4148.9cm^{-1} , 青: 4149.24cm^{-1} , 黒: 4149.46cm^{-1})の規格化された強度のレーザー偏光角による変化、曲線は先行研究の fitting 関数に基づく

理学院 物理学系 平原研究室 2020 年度研究報告

磁性トポロジカル絶縁体へテロ構造の XMCD 測定

理学院 物理学系 福嶋隆司朗、一ノ倉聖、平原 徹
<https://thirathara.wixsite.com/hiraharagroup>

トポロジカル絶縁体はバルクが絶縁体であるが、表面に金属的なスピン偏極したディラックコーンを有し、時間反転対称性が破れない限りディラック点がトポロジカルに保護されており、ギャップを開けることができない。磁性を導入して時間反転対称性を破ると、ディラック点にギャップが開くと同時に輸送特性では無磁場下での量子ホール効果である、量子異常ホール効果 (QAHE) が実現する。2014 年に QAHE が初めて実験的に実証されてから多くの研究が行われてきたが、その実現温度は最大でも 2 K である [1]。そこで、QAHE 由来の無散逸に伝導するエッジ状態をデバイスに応用するには、より高温で QAHE を実現することが求められている。

これまでトポロジカル絶縁体に強磁性を付加する方法として薄膜作製時に磁性不純物を導入する、という方法が行われていた。これに対し我々は最近、Mn と Se をトポロジカル絶縁体 Bi_2Se_3 に蒸着すると、 Bi_2Se_3 の表面最上位層に Mn と Se が潜り込むことで $\text{MnBi}_2\text{Se}_4/\text{Bi}_2\text{Se}_3$ という、秩序だった磁性トポロジカル絶縁体へテロ接合を形成できることを明らかにした。このヘテロ構造では室温まで約 100 meV という大きなディラックコーンギャップが観測された。さらに SQUID による磁化測定では面直の磁化曲線にヒステリシスが観測され、確か

にディラックコーンギャップが磁性由来のものであることが明らかになった [2]。しかし Bi_2Se_3 ではフェルミ準位を制御する方法が確立されておらず、実際に輸送測定で QAHE を観測するのが難しいと予想される。そこでフェルミ準位の制御方法が確立されている Bi_2Te_3 に対して同様に Mn と Te の蒸着を行い(この試料を以後 Mn,Te/ Bi_2Te_3 と呼ぶ)、 Bi_2Se_3 と同じ現象が起きるかを検証した。角度分解光電子分光法でディラックコーンギャップの観測を行ったところ、15 K で 70 meV 程度開いていたギャップが 200 K で閉じることが明らかになった [3]。本研究ではこの Mn,Te/ Bi_2Te_3 の磁化特性を明らかにしてディラックコーンギャップとの関係を明らかにすることを目的に XMCD 測定を行った。

XMCD 実験は SPring-8 BL23SU で行った。液体ヘリウムにより最低 6 K まで試料を冷却して測定を行った。Mn,Te/ Bi_2Te_3 試料は実験室で作成後表面保護のためにキャップしたものを BL23SU の超高真空装置に導入後、200-250 度で加熱してキャップを飛ばすことで清浄表面を回復して行った。

図 1(a) に 6 K で試料面直に 8 T の磁場を印加した際に測定された XMCD スペクトルを示す。 L_3 、 L_2 吸収端ともに明確なシグナルが出ていることが分かる。図 1(b) に示すように XMCD スペクトルの形状は磁場

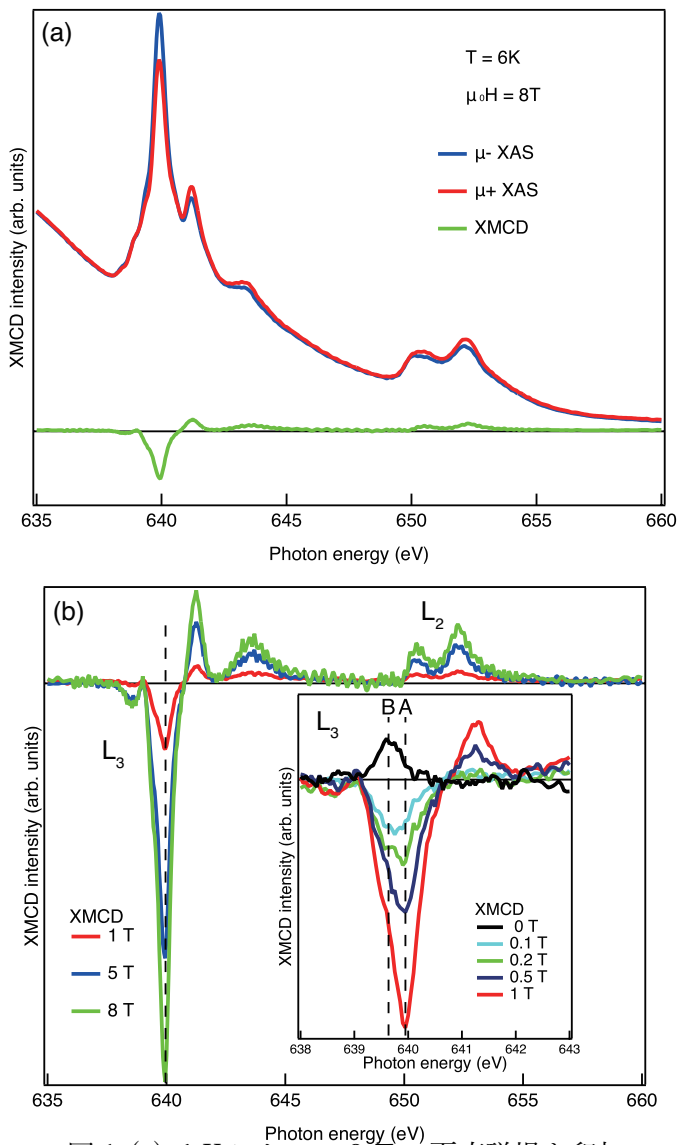


図 1 (a) 6 K において 8 T の面直磁場を印加して得られた Mn,Te/Bi₂Te₃ の XMCD スペクトル。(b) 6 K における XMCD スペクトルの磁場依存性。挿入図が L₃ における 1 T 以下のデータを示している。ピーク A および B の二つの成分があることが分かる。また残留磁化が印加磁場と反対方向になっている。

を 5 T, 1 T と下げても変化しなかった。しかし挿入図にあるように磁場を 0.5 T 以下にすると L₃ 吸収端で変化が見られた。1 T では 639.9 eV にピークがあったが(図中の A)、磁場を下げても 0.2 T にすると 639.5

eV(図中の B)でもピークが見られるようになり、それ以下の磁場ではピーク A よりも B が目立つようになった。これは磁性に寄与している Mn 原子が 2 種類存在することを示唆している。さらに残留磁化における XMCD スペクトルは磁場印加時と逆向きであるという特異な振る舞いが観測された。そこでより詳細な知見を得るために、A と B のエネルギーにおける 6 K での XMCD シグナルの磁場依存性(図 2(a))および 0.2 T での温度依存性(図 2(b))を測定した。

図 2(a) に示すように、±3 T の範囲での磁化曲線を測定すると、ピーク A では概ね磁場に対して磁化が比例する常磁性的な傾向が見られ、ピーク B に関してはゼロ磁場付近でヒステリシスが観測され、強磁性的な振る舞いをすることが分かった。ただ上述の通り、残留磁化における XMCD スペクトルの符号が印加磁場を反対方向であったことを反映して、磁化曲線も負のヒステリシス(プロテリシス)であった(矢印が時計回りに回っているが、本当の強磁性体では反時計回りである) [4]。ピーク A の方もゼロ磁場近傍で何か時計回りのシグナルの兆候が見られており、本来の意味の常磁性とは言えないかもしれない。図 2(b) より、強磁性成分ピーク B のキュリー温度は $T_c \sim 25$ K 程度であると推定できた。一方ピーク A の方は 25 K 以上でも緩やかにと強度が下がり続けており、やはり常磁性成分と考えるのが妥当と思われる。

以上の結果をまとめると、Mn,Te/Bi₂Te₃ の系において磁性に関係している Mn が 2 種類存在し、一つは $T_c \sim 25$ K の強磁性的、もう一つは常磁性的であることが分かった。また強磁性成分では負のヒステリシスが観

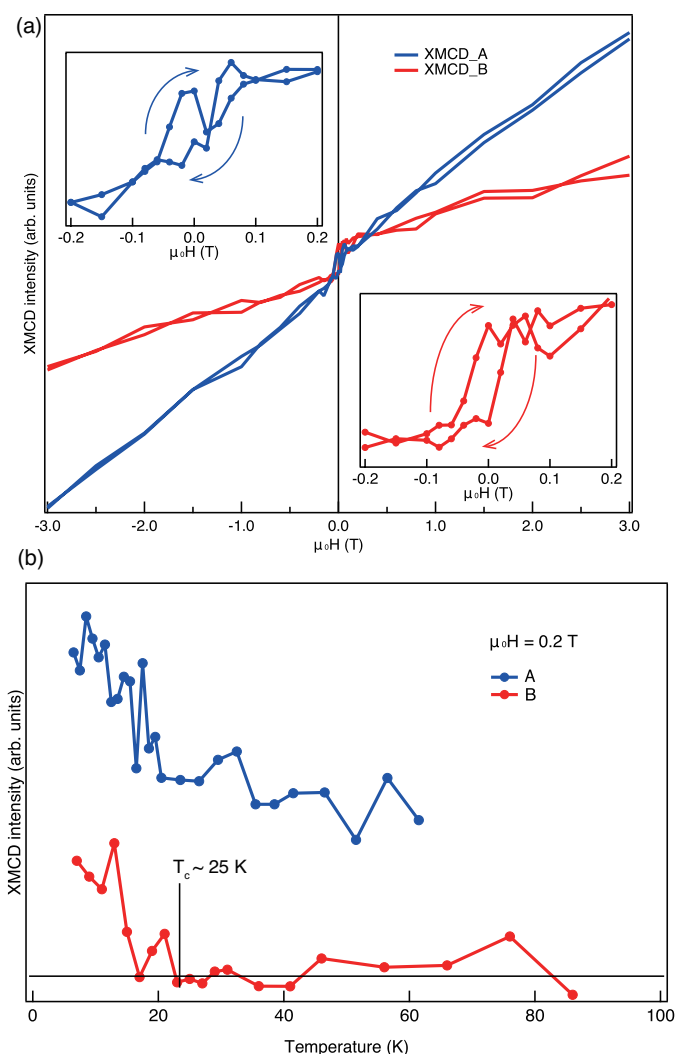


図 2 (a) 6 K における Mn,Te/Bi₂Te₃ のピーク A および B の XMCD 強度を用いた磁化曲線。挿入図がゼロ磁場近傍の様子を表しており、A が常磁性的、B が強磁性的であることが分かる。(b) ピーク A および B の 0.2 T における XMCD 強度の温度依存性。強磁性成分 B のキュリー温度が 25 K 程度であると分かる。

測され、通常の強磁性体ではないことが推定された。そして XMCD 総和則による定量的解析から、8 T、6 K における平均スピンの磁気モーメントは $0.6 \mu_B/\text{Mn}$ 、平均軌道磁気モーメントは $0.04 \mu_B/\text{Mn}$ と導出された。これは強磁性や常磁性の Mn だけから想定される値よりも小さく、反強磁性の Mn が

存在していることを暗に示している。事実プロテリシスや負の残留磁化は微粒子などにおいて、強磁性成分とそれ以外の成分の反強磁性的な交換相互作用の結果生じると報告されている [4]。今後、反強磁性成分や反強磁性的な相互作用が存在するかを実験的に検証する必要がある。

最後に Mn,Te/Bi₂Te₃ の系におけるディラックコーンギャップと磁化特性の関係について議論する。上述の通り、ギャップは 200 K まで存在したが、強磁性は 25 K までしか観測されずこの二つの温度は明らかに異なっている。もしかすると反強磁性成分が存在しておりそのネール温度が 200 K であるかもしれない。あるいはスピンの長距離秩序がなくても、ミクロな短距離の局在スピン間の相互作用による時間反転対称性の破れにより、ディラックコーンにギャップが開き得ることを示唆していると思われる。例えば強磁性成分の短距離秩序が 200 K まで存在している、あるいは試料内の Mn 同士が反強磁性的に相互作用をしており、そのエネルギースケールが 200 K 程度である可能性がある。今後この Mn,Te/Bi₂Te₃ の構造を明らかにし、理論計算と組み合わせるなどしてギャップの起源に迫っていきたいと考えている。

参考文献

- [1] M. Mogi *et al.*, Applied Physics Letters **107**, 182401 (2015).
- [2] T. Hirahara *et al.*, Nano Letters **17**, 3493 (2017)
- [3] T. Hirahara *et al.*, Nature Comm. **11**, 4821 (2020).
- [4] R. K. Zheng *et al.*, Jour. Applied Physics **96**, 5370 (2004).

理学院化学系(化学コース) 西野研究室 2020 年度 研究報告

[序文] 単分子接合は低次元極小サイズの伝導体としてバルク状態とは異なる電子物性が期待されることから、電子素子としての応用が期待されている[1]。これまで、主に、金属線を力学的に破断することによって形成されるナノギャップに分子を架橋させることで単分子接合が作製されてきた。機械的に破断される接合では応力の影響を受けやすく安定性が低いという課題があった。そこで本研究では固体電解質中で電圧印加により導電性フィラメントの形成・破断させる原子スイッチの利用に着目した [2]。固体電解質層としてタンタル酸化物を用い、導電性分子ワイヤーの基本単位として重要なアセチレン分子接合の作製を試みた。

[実験] 原子スイッチは銀、タンタル酸化物、白金の三層構造を成膜することにより作製した。作製した原子スイッチデバイスを高真空まで真空引きした後、アセチレン雰囲気酸化で、フィラメントの形成破断を繰り返した際の伝導度の分布を計測した。次いで計測系を液体ヘリウム中に設置し、非弾性トンネル分光計測 (IETS) を行った[3]。

[結果・考察] Figure 1 にフィラメントが破断した後の電気伝導度変化に関する 2 次元ヒストグラムである。真空中ではリセット電圧後に電気伝導度が即座に減少した(Figure 1a)。一方、アセチレン雰囲気下では、フィラメントの破断後に $0.2 G_0$ ($2e^2/h$) 電気伝導度状態が 0.5 秒程安定に保持されることが示唆され、アセチレン分子に由来した準安定状態がフィラメント破断後に形成されることが示唆された(Figure 1b)。観測された伝導度状態の構造に関して知見を得るため IETS 計測を試みた。Fig. 2 に $0.2 G_0$ において観測した IETS スペクトルを示す。Fig. 2 に示すように 161 mV, 312 mV の位置にピークが観測された。ピークが観測されたエネルギーは金属表面に吸着したアセチレン分子の振動エネルギーに対応する。よって、 $0.2 G_0$ の伝導度状態はアセチレン分子が架橋した分子接合に対応していることが示唆された。以上より、固体電解質の内部に分子接合構造を作製し、分子に由来した振動の検出に成功した。

[参考文献]

- [1] S.Kaneko, T. Nishino, *et al.*, *Chem. Sci*, 10 6261-6269 2019.
- [2] A. Aiba, S. Kaneko, T. Tsuruoka, K. Terabe, M. Kiguchi, T. Nishino, *Appl. Phys. Lett.* 117 233104 2020.
- [3] A. Aiba, T. Nishino, *et al.*, *ACS Appl. Mater. Inter.* 11 27178-27182 2019.

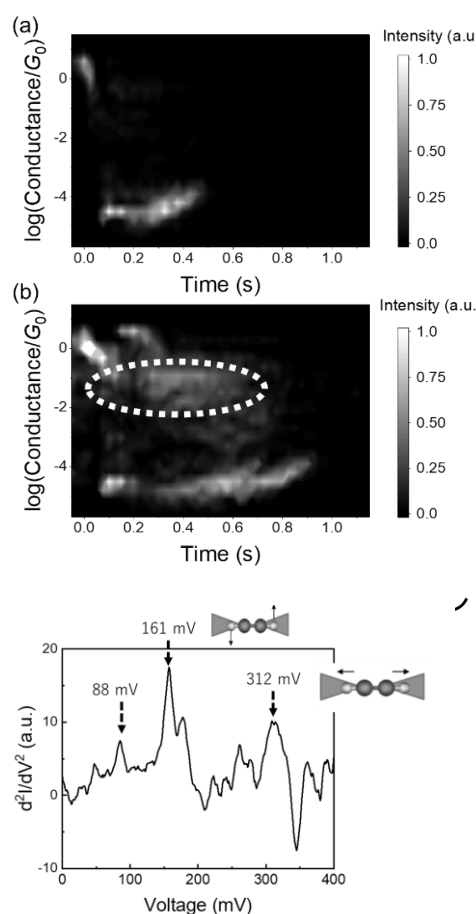


Figure 2 $0.2 G_0$ の電気伝導度の準安定状態で観測した d^2I/dV^2 スペクトル。

理学院化学系 腰原・沖本研究室 2020 年度研究報告

中性イオン性相転移を示す新規一次元鎖状高分子単結晶における光誘起電荷移動ダイナミクス

理学院化学系 (エネルギーコース)

石川 忠彦

<http://www.pipt.sci.titech.ac.jp/>

1. はじめに

我々は、新規光機能性開拓及びそのメカニズム解明をテーマにフェムト秒レーザーパルスを光源として用いた時間分解分光を一つの柱として研究を進めている。光励起によるエネルギー注入は、非接触かつ高速に行えることが魅力である。時間分解測定でその途中経過を明らかにしていくことが重要であり、特に新規物質の光応答を観測していくことで既報の物質との比較を通してメカニズムの理解を深めていくことを進めている。

中性イオン性 (NI) 相転移を起こす電荷移動錯体である TTF-CA は、特に高効率の光誘起ダイナミクスが起こる事で注目され盛んに研究をされてきた [1]。この物質はドナー (D) である TTF 分子とアクセプター (A) である CA 分子が積層した 1 次元鎖構造を基本とした結晶構造をしており、温度や圧力変化により D 分子と A 分子間での電荷移動が結晶全体で起こる NI 相転移を起こす物質である。この NI 相転移は、D 分子のイオン化エネルギーと A 分子の電子親和力に対して、イオン化した DA 分子間のクーロン引力によるエネルギー利得の大きさが結晶構造により変化する事で説明される [2]。この微妙なバランスを光励起で崩す事で高効率の光誘起電荷移動相転移ダイナミクスが実現していると考えられている。ここまで述べた NI 相転移のメカニズムからは、電荷移動に伴い、スピンを持たない中性相から電荷移動によりスピンを持つイオン性相に変わる磁性相転移の側面もあるはずなのだが、実際にはイオン性相において、DA 間の二量化が起き、スピン一重項化して非磁性相になる為に、磁性相転移の側面が観測されることは無い。

2. 新規中性イオン性相転移系 $[\text{Ru}_2(3,4\text{-Cl}_2\text{PhCO}_2)_4\text{TCNQ}(\text{OEt})_2] \cdot \text{DCE}$

本研究で扱った $[\text{Ru}_2(3,4\text{-Cl}_2\text{PhCO}_2)_4\text{TCNQ}(\text{OEt})_2] \cdot \text{DCE}$ は、D 分子である Ru 複核錯体 $\text{Ru}_2(3,4\text{-Cl}_2\text{PhCO}_2)_4$ と A 分子である $\text{TCNQ}(\text{OEt})_2$ が共有結合で繋がった一次元鎖構造 (DA 鎖) を持つ結晶試料である。転移温度 230 K で中性イオン性 (NI) 相転移を起こす [3]。電荷移動錯体以外で NI 相転移を起こす初めての物質である。本物質の NI 相転移は、DA 分子対の二量化を示さず、I 相で磁性を示す。従ってこの系における光誘起ダイナミクスを観測し、従来の二量化を伴う NI 相転移系である TTF-CA と比較する事は、興味深い。二量化構造変化が光誘起ダイナミクスにおいて果たす役割を明らかにする目的とともに、光励起による磁性制御を行う事の可能性の探求も目的としている。そこで我々は、単結晶試料を用いた光学測定を行った。

3. $[\text{Ru}_2(3,4\text{-Cl}_2\text{PhCO}_2)_4\text{TCNQ}(\text{OEt})_2] \cdot \text{DCE}$ 単結晶の光誘起ダイナミクス

図(a)は、DA 鎖方向に平行な直線偏光 ($E \parallel \text{chain}$) での光学密度(OD)スペクトルの温度変化である。低温 I 相で、1.5 eV 付近にイオン化した A 分子の分子内遷移に対応した吸収ピークが現われる。つまりこのピークの出現は、相転移により DA 間に電荷移動が起きた事を意味している。また、別の測定より、これより低エネルギーの 0.8eV を中心とする吸収ピークが観測されており、こちらは DA 分子間の電荷移動遷移に対応すると考えられる。これらの知見をもとに、我々は、フェムト秒レーザーを光源とした時間分解分光測定を行った。実験条件として、試料はクライオスタット中で 100K 維持され、DA 分子間の電荷移動遷移を励起し、透過光強度変化の測定を、1.4-2.1 eV の範囲でおこなった。その結果、光励起直後に大きく OD が変化し、その後、約 0.4 ps と 4.6 ps の 2 つの時定数を持つ緩和過程が存在する事が分かった。この二つの緩和過程に対応する光誘起状態のスペクトルを図(b)に丸印で示した。

0.4 ps の時定数で緩和する状態のスペクトル (赤丸) は、NI 相転移の際の差分スペクトル形状 (実線) と一致していない。一方で、直交する偏光 ($E \perp \text{chain}$) での励起直後のスペクトル変化は、温度変化による NI 相転移のスペクトル変化にほぼ類似している。この事から、光誘起過渡状態では、DA 分子間の価数変化が起こると共に、別の状態変化も伴うと考えられる。このスペクトル変化は、低エネルギーに向けて吸収が増大する形をしており、光誘起キャリアのような何らかの動き回れる素励起が導入されたことを示唆しているが、光励起キャリアのものとするには高エネルギーで観測されている事から、その同定を現在模索中である。従来の電荷移動錯体 NI 転移系では観測されなかった応答であり、そのメカニズムを解明したい。

本研究は、東北大学宮坂等研究室との共同研究である。

[参考文献]

- [1] H. Okamoto, Y. Ishige, S. Tanaka, H. Kishida, S. Iwai, and Y. Tokura, Phys. Rev. B **70**, 165202 (2004).
- [2] J. B. Torrance, J. E. Vazquez, J. J. Mayerle, and V. Y. Lee, Phys. Rev. Lett. **46**, 253 (1981).
- [3] W. Kosaka, Y. Takahashi, M. Nishio, K. Narushima, H. Fukunaga, and H. Miyasaka, Adv. Sci. 1700526 (2017).

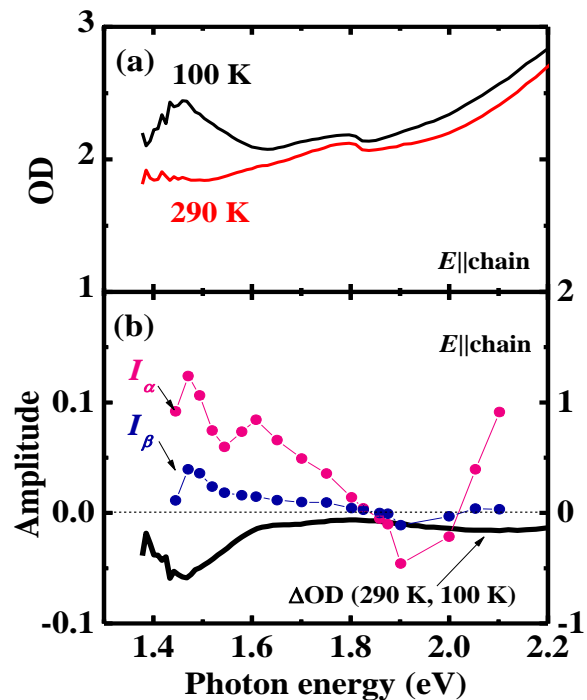


図. $[\text{Ru}_2(3,4\text{-Cl}_2\text{PhCO}_2)_4\text{TCNQ}(\text{OEt})_2] \cdot \text{DCE}$ の(a):高温相(290 K)および低温相(100 K)における光学密度(OD) スペクトル($E \parallel \text{chain}$)。 (b): $E \parallel \text{chain}$ で観測した 100 K での光誘起過渡状態スペクトル (丸印) と、100 K と 290 K の OD スペクトルとの差分 (実線)

物質理工学院材料系森研究室 2020 年度研究報告

川本正, 倉田浩平, 森健彦
物質理工学院材料系

<http://www.op.titech.ac.jp/lab/mori>

真性モット絶縁体 β -(BEDT-TTF)TaF₆ の構造と物性

分子性導体 κ -(BEDT-TTF)₂X (BEDT-TTF: bis(ethylenedithio)tetrathiafulvalene, X:アニオン) は BEDT-TTF 分子が井桁状に配列した構造をもつ。強いダイマー構造によりダイマーを 1 サイトとみなせ、エネルギーバンドは実効的に 1/2 充填率バンドとなる。ダイマーモデルにおいて、同一サイトのクーロン反発エネルギー U とバンド幅 W の比 U/W の値によって基底状態が反強磁性絶縁体—超伝導—金属と変化すると考えられている [1]。また、ダイマーは三角格子を形成しており、ダイマー間のトランスファー積分は t' と t の 2 種類になることが多い。トランスファー積分の比 t'/t が 1 に近いと強くフラストレートした三角格子を実現していると考えられ、なかでも 32 mK まで電子スピンの長距離秩序が観測されないダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ が注目されている [2]。

BEDT-TTF 分子と 8 面体アニオン MF₆ ($M = P, As, Sb$) を用いた伝導体では、ドナー分子が振じられてスタックするモードと分子短軸方向にスライドしてスタックするモードが交互に繰り返されて積層する δ 型構造が知られている [3]。我々は (BEDT-TTF)₂TaF₆ には 2 種類の δ 型 (単斜晶系の δ_m 相と直方晶系の δ_o 相) が存在し、それぞれ 276 K と 300 K で電荷秩序転移を示してスピニ—重項状態になることを明らかにしてきた [4]。また、[TaF₆]⁻ を用いて得られる結晶の中にダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂TaF₆ を発見し、1.6 K まで磁気秩序を示さないことを見出してきた [5]。さらなる新物質としてダイマー構造をもたない真性モット絶縁体 β -(BEDT-TTF)TaF₆ を発見したので、この物質の構造と物性について報告する。

図 1 に β -(BEDT-TTF)TaF₆ の結晶構造を示す [6]。ドナー分子・アニオン分子ともに対称心上にあり、結晶学的に独立な分子は 0.5 分子ずつである。室温において、ドナー分子の末端のエチレン基部分にも乱れはない。ドナー分子は c 軸方向にユニフォームスタックしている。ドナーとアニオンの比が 1:1 であることから、真の 1/2 充填率バンドをもつ真性モット絶縁体を実現していることがわかる。スタック

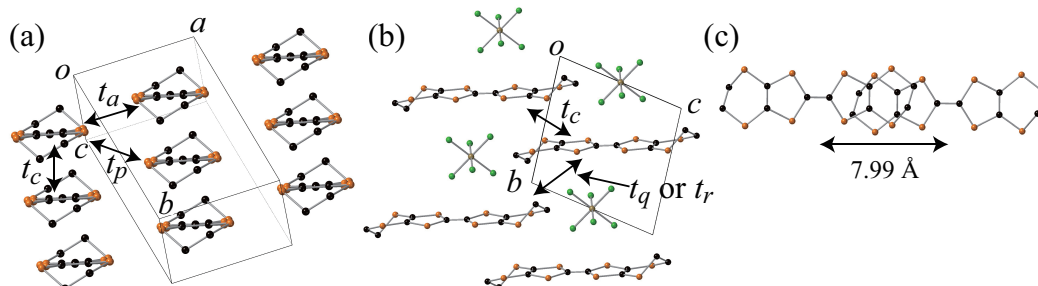


図 1: β -(BEDT-TTF)TaF₆ の結晶構造. (a) 分子長軸方向からの投影と (b) bc 面投影. (c) スタックしている分子の重なり方.

ク方向の分子の重なり方を見ると、分子長軸方向におよそ $\sim 8 \text{ \AA}$ と大きくスリップしている。分子短軸方向へのスリップはほとんどないため、分子配列は β 型に分類される [7]。伝導シートは ac 面だが、大きなスリップのためシート間方向にも重なりがあることがわかる。

結晶構造解析の結果を用いて、トランスファー積分は $t_c = 40.5$ $t_a = 39.9$ $t_p = 0.1$ $t_q = -7.0$ $t_r = -0.5$ meV と計算される。分子長軸方向の大きなスリップのため、スタック方向のトランスファー t_c とスタック間方向の t_a がほぼ同じ値になっている。さらに、対角方向は分子の重心間距離が 12 \AA と極めて大きいため、トランスファー t_p がほぼゼロという四角格子構造を実現している。バンド計算の結果は図 2(a) に示すように教科書的な四角格子のフェルミ面を示すが、電子相関により図 2(b) のようにバンドが分裂して絶縁体となっているはずである。バンド幅の計算値は $W = 0.3$ eV と極めて狭く、大きな U/W をもつ真性モット絶縁体を実現していると考えられる。

電気抵抗率の測定は 2 端子法で電圧印加による電流測定にて行なった。290 K でおおよそ $5 \times 10^5 \text{ \Omega cm}$ と大きな値である。温度を低下させると抵抗は上昇し、 $240 \leq T \leq 290$ K の温度領域では熱活性化型の振る舞いを示す (図 3)。アレニウスプロットの傾きから電荷ギャップ E_g は 0.55 eV と見積もられる。

X バンドの電子スピン共鳴によるスピン磁化率・線幅・ g 値の温度依存性を図 4 に示す。スピン磁化率はキュリーののではなく低温に向けて緩やかに上昇し、10 K 付近で減少する。線幅は温度を下げると狭くなっていくが、おおよそ 25 K 以下で発散的な増大に転じる。 g 値はほとんど温度によらないが、10 K 付近で異常が見られる。これらの振る舞いは 10 K 付近で反強磁性相に転移していることを示唆している。

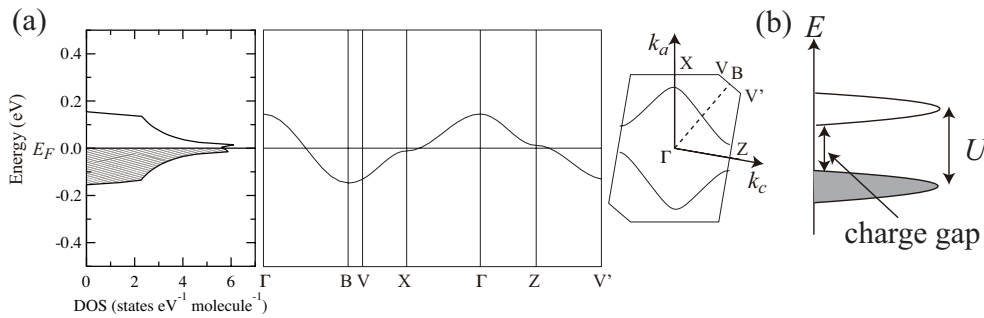


図 2: (a) バンド計算による状態密度とバンド構造. (b) オンサイトクーロン反発 U により (a) の状態密度の図は 2 つに分裂する.

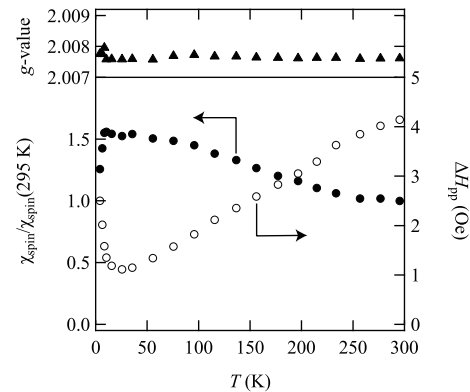
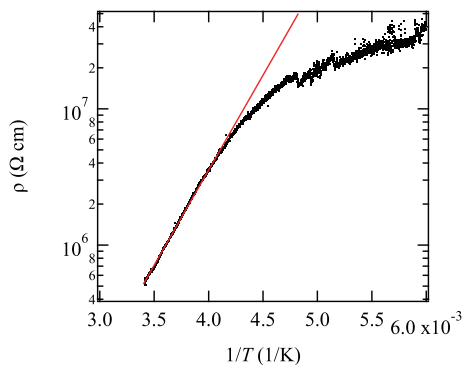


図 3: 抵抗率の温度依存性のアレニウスプロット. 図 4: ESR スピン磁化率, 線幅, g 値の温度依存性.

基底状態が反強磁性秩序を有するかを明らかにするために、マイクロカンチレバーを用いた磁気トルクの測定を行なった。図 5(a) に、様々な磁場方位における磁気トルクの磁場依存性を示す。磁場を a 軸近傍に印加するとスピフロップ転移と考えられる振る舞いが現れている。このピーク構造は磁場と a 軸のなす角度 θ が 40° 程度まで観測されるが、 $\theta \sim 50^\circ$ ではスピが連続的に回転することによるトルク曲線に変化している。また、 b^*c^* 面内における磁気トルクには、このピーク構造は観測されない。したがって、この物質の基底状態は磁化容易軸が a 軸方向の 1 軸性反強磁性絶縁体である。トルクがピークを示す磁場 H_{\max} の角度依存性はフロップ磁場を H_{sf} を用いて $H_{\max}(\theta) = H_{\text{sf}}/\sqrt{\cos(2\theta)}$ で振舞うことが知られている [8]。これを用いると、フロップ磁場 $\mu_0 H_{\text{sf}}$ は 1.6 K で 0.8 T と見積もられる。このピーク構造は温度を上昇させるとピーク高さが減少し 10 K で消失することから、ネール温度 T_N はおよそ 10 K である (図 5(b))。

β -(BEDT-TTF)TaF₆ と構造がよく似た物質として ζ -(BEDT-TTF)PF₆ が報告されている [9]。この物質もダイマー構造をもたない真性モット絶縁体である。ドナー分子のカラムにおいて分子短軸方向にもスリップしているため、分子配列は β'' 型に分類される [7]。そのため、カラム間方向のトランスファーはスタック方向より 5 倍ほど大きく、1 次元的な電子構造をもつ。低温ではスピン一重項状態を示すので、基底状態はおそらくスピンパイエルス状態であると考えられている。この ζ -PF₆ 塩は偏光反射スペクトルの測定がなされており、その結果からオンサイトクーロン反発 U が 0.82 eV と求められている。この U と β -TaF₆ 塩の抵抗の温度依存性から見積もった電荷ギャップ E_g を用いると、 $U - E_g = W$ と仮定した場合のバンド幅 W は 0.27 eV となり、バンド計算による見積もりとよく一致する。

本稿では新物質 β -(BEDT-TTF)TaF₆ の構造と物性について報告した。この物質はダイマー構造をもたない四角格子型の真性モット絶縁体であり、その基底状態は $T_N = 10$ K の反強磁性絶縁体であることを明らかにした。

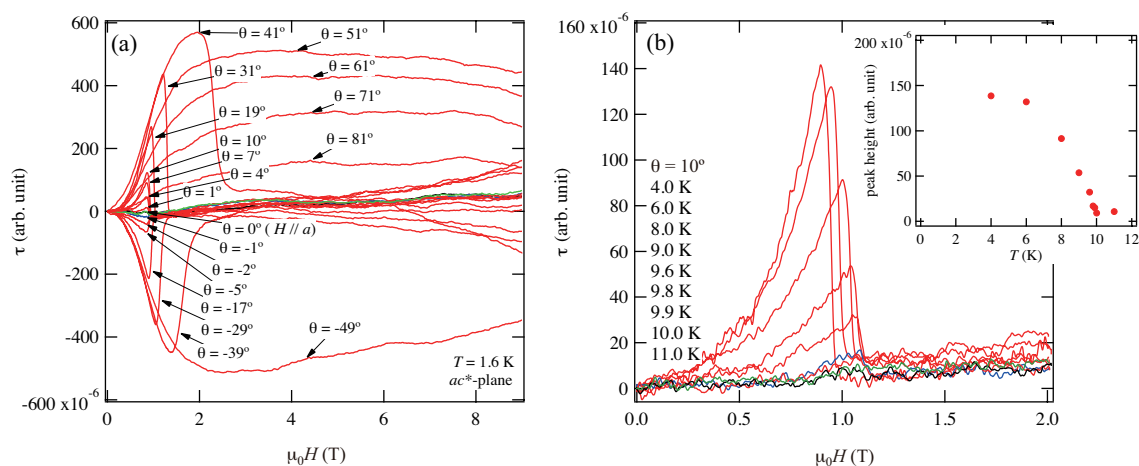


図 5: (a) 1.6 K での様々な磁場方位における磁気トルクの磁場依存性. (b) 様々な温度におけるスピフロップ近傍の磁気トルクの磁場依存性. 磁場は a 軸から c^* 軸方向に 10° 傾けている. 内挿図はピーク高きの温度依存性.

参考文献

- [1] K. Kanoda, *Hyperfine Interact.* **104**, 235 (1997).

- [2] Y. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 107001 (2003).
- [3] R. Laversanne *et al.*, Solid State Commun. **52**, 177 (1984).
- [4] T. Kawamoto *et al.*, Magnetochem. **3**, 14 (2017).
- [5] T. Kawamoto *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 083703 (2018).
- [6] Crystallographic data of β -(BEDT-TTF)TaF₆: chemical formula C₁₀H₈F₆S₈Ta, triclinic, space group $P\bar{1}$, $a = 6.5788(12)$ Å, $b = 8.523(2)$ Å, $c = 8.7380(17)$ Å, $\alpha = 77.954(18)^\circ$, $\beta = 78.596(15)^\circ$, $\gamma = 79.877(19)^\circ$, $V = 465.04(17)$ Å³, $Z = 1$, and $D_{\text{calc}} = 2.427$ g/cm³. The final $R1$ value is 0.0205 for 2582 reflections ($F^2 > 2\sigma(F^2)$), and $wR2(F^2)$ is 0.0521 for all 2709 reflections.
- [7] T. Mori, Bull. Chem. Soc. Jpn. **71**, 2509 (1998).
- [8] S. Weyeneth *et al.*, Phys. Rev. B **83**, 134503 (2011).
- [9] H.-L. Liu *et al.*, Chem. Mater. **9**, 1865 (1997).

物質理工学院応用化学系 大友研究室 2020 年度研究報告

層状岩塩型 LiNiO_2 のエピタキシャル成長と電気伝導性

物質理工学院応用化学系 大友研究室

矢島 達也, 相馬 拓人, 大友 明

<http://www.ohtomo.apc.titech.ac.jp/>

1. はじめに

層状岩塩型構造を有する LiNiO_2 は, 安価で無害なりチウムイオン二次電池の電極材料として近年研究が盛んである[1, 2]. 電子物性の面では $s = 1/2$ の二次元三角格子系のため極低温までフラストレーションが残り常磁性体となることが知られている[3]. 多結晶でのみ報告されている電気伝導性は絶縁体的である. Li が脱離した $\text{Li}_{1-x}\text{NiO}_2$ では Ni^{4+} の高原子価が生じていると考えられるが, 詳しい物性は明らかにされていない. LiNiO_2 は, 固溶体 $\text{Li}_{1-x}\text{Ni}_{1+x}\text{O}_2$ ($-1/3 \leq x \leq 1$) の $x = 0$ に相当し (Fig. 1), Li が欠損したり Ni の高原子価状態が不安定になったりすると容易に岩塩型構造に変態する. このことは, 単結晶の作製を困難する大きな要因であり, これまで電気伝導性がほとんど研究されてこなかった理由の一つでもある. もし LiNiO_2 のエピタキシャル薄膜を作製することができれば, 当研究室がこれまで報告してきた

様々な薄膜材料 ($\text{Li}_{1+x}\text{Ti}_2\text{O}_4$, $\text{Li}_{1+x}\text{V}_2\text{O}_4$, $\text{Li}_{1-x}\text{NbO}_2$, Li_xWO_3 , Li_xMoO_3) に対する (電気) 化学的なイオン脱挿入によるフィリング制御が適用可能となり, ひいては元来の電気伝導性を調べることに繋がると期待される. この観点では, 最近注目されている層状酸化物の一つである $\text{Nd}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{NiO}_2$ [4] や $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot 1.3\text{H}_2\text{O}$ [5] におけるエキゾチック超伝導との関連性を調べることは興味深い. つまり, 層状岩塩型 LiNiO_2 やその類縁体 $\text{Li}_{1-x}\text{NiO}_2$ において特異的な電気伝導現象が生じる可能性を検討することは意義がある.

本研究では, 層状岩塩型 LiNiO_2 のエピタキシャル薄膜の合成法を確立し, 本質的な電気伝導性を調べることを目的とした.

2. 層状岩塩型 LiNiO_2 のエピタキシャル成長

まず, パルスレーザー堆積法を用いて Li-Ni-O 薄膜の合成法を検討した. 一般にパルスレーザー堆積法では原料の組成が維持されたまま薄膜の気相成長が進行すると言われているが, 本研究で扱う Li 含有酸化物の場合は, 気相成長中に原子量が小さい Li が他の気相成分によって散乱されたり, 基板表面から揮発したりするため, 薄膜にとり込まれる Li 量は減少する. 定比組成の LiNiO_2 を原料 (レーザーを照射して昇華するため, ターゲットとよばれる) に用いて合成した薄膜の対称面 X 線回折プロファイルを Fig. 2 に示す. LiNiO_2 003 反射に相当する回折ピークが見られないことと薄膜由来の回折ピークのバルク値からのずれから, Fig. 1 における $\text{Li/Ni} \sim 0.2$ に相当する cubic 相の薄膜が得られたことが分かった. 同じく層状岩塩型構造を有する LiCoO_2 では, 定比組成のターゲットを用いてエピタキシャル薄膜が得られることが知られている[9]. 今回の結果は LiCoO_2 とは大きく異なり, Li が著しく欠損したことを示唆している. このことは, これまで LiNiO_2 のエピタキシャル薄膜が得られなかった要因の一つと考えられる.

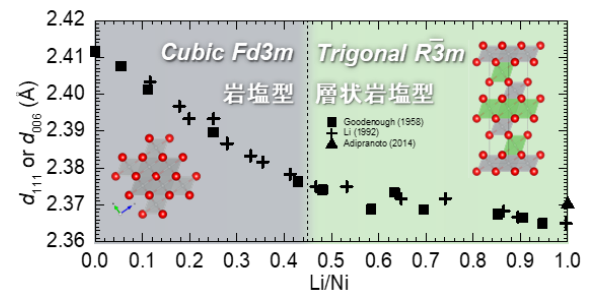


Fig. 1 固溶体 $\text{Li}_{1-x}\text{Ni}_{1+x}\text{O}_2$ の組成と面間隔の関係[6–8].

また、この薄膜をポストアニールすると不均化反応が進行した。格子不整合の小さい MgAl_2O_4 (111)基板を用いても層状岩塩型構造ではなくスピネル型構造の薄膜が得られた。このことから、定比組成のターゲットを用いた合成は不可能であると結論した。

そこで種々の検討により、①Li 過剰 ($\text{Li}/\text{Ni} = 2.5$) 原料ターゲット、②格子不整合の「大きい」 c 面サファイア基板、③酸素雰囲気下非加熱での前駆体薄膜合成、④ポストアニール、の4つの要素からなる2段階合成法を新たに開発した。以下で述べる通り、この合成法を用いて層状岩塩型構造を有する LiNiO_2 のエピタキシャル成長に初めて成功した。

まず①の条件のみで直接合成した場合は cubic 相の生成を抑制できなかった。一方で、真空下非加熱での薄膜合成では前述の通り薄膜にとり込まれる Li 量は減少しないと考えられる。しかしながら、真空下非加熱での薄膜合成でも $\text{Li}/\text{Ni} = 1.5$ のターゲット組成まで cubic 相となることが報告されている [10]。 $\text{Li}/\text{Ni} = 2.5$ でも試したところ、文献と同様に cubic 相となることがわかった。そこで③の条件を適用したところ、前駆体合成時に酸素を導入することで cubic 相の生成が抑制されることがわかった。その結果、非晶質の薄膜を得ることに成功した (Fig. 3 下部)。そこで④の条件を適用してこの薄膜を大気下 700°C で1時間アニールすると、trigonal 相の層状岩塩型構造を有する LiNiO_2 に結晶化した (Fig. 3 上部)。 LiNiO_2 003 と 006 反射の積分強度比 I_{003}/I_{006} は、層状岩塩型構造の秩序度と関係していることが知られている。Li と Ni のアンチサイト欠陥が少ない高品質な試料では I_{003}/I_{006} が大きくなる。得られた薄膜の I_{003}/I_{006} は 2.6 であり、単結晶における 6.8 には及ばなかった [11]。結晶化度の向上に向けてさらなる条件の検討が必要である。その一つが層状岩塩型構造を有する LiNiO_2 との格子不整合の小さい MgAl_2O_4 (111)基板を用いることだが、興味深いことに②の条件のように格子不整合の大きい基板を敢えて選択した方が良い結果が得られた。

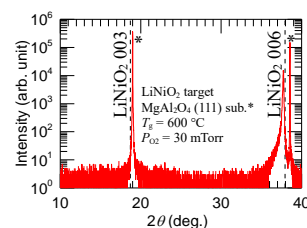


Fig. 2 定比組成原料を用いた場合の対称面 X 線回折プロファイル。

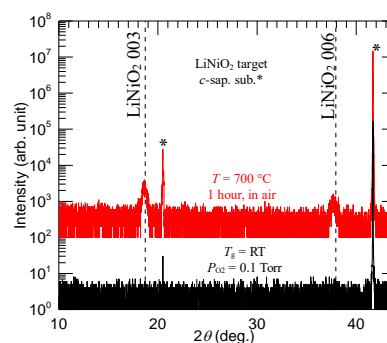


Fig. 3 Li 過剰原料を用いて二段階合成した場合の対称面 X 線回折プロファイル。前駆体 (下)、ポストアニール後 (上)。

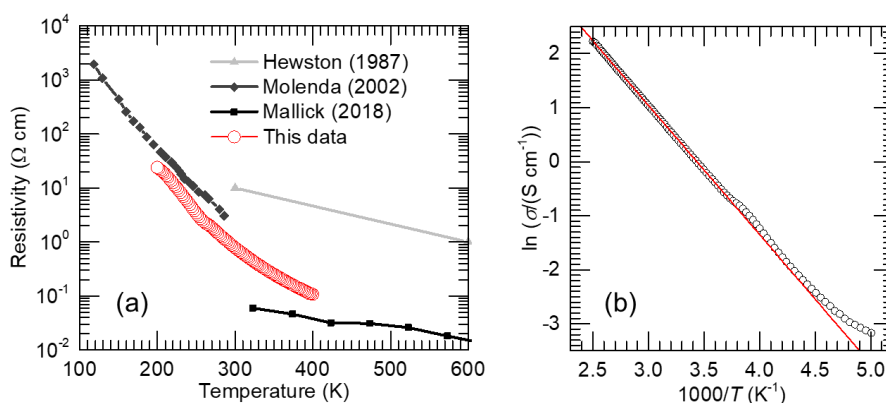


Fig. 4 (a)層状岩塩型 LiNiO_2 エピタキシャル薄膜の電気抵抗率の温度依存性(○)および多結晶での報告値[12–14]. (b)熱活性化型伝導機構によるフィッティング。

3. 層状岩塩型 LiNiO_2 エピタキシャル薄膜の電気抵抗率の温度依存性

合成した層状岩塩型構造を有する LiNiO_2 エピタキシャル薄膜の電気抵抗率を、物理特性測定システム (PPMS) を用いて測定した。結果を Fig. 4 に示す。多結晶に対して報告されている温度依存性は、絶縁

体的なふるまいを示している[12–14]. 熱活性型の電気伝導機構を仮定して,

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)$$

をもちいてフィッティングしたところ, 活性化エネルギーは0.21 eVと求まり, 多結晶での値とほぼ一致した[13]. 一方で低温側では線形から逸脱していることがわかった. 多結晶のゼーベック係数の温度依存性は, 300 Kを境に低温側で急峻に立ち上がることが報告されており[13], モット・ハバード型の電子状態を反映したキャリアの局在化が示唆されている. このことが層状岩塩型LiNiO₂の本質的な伝導機構であるか検証するためには, より秩序度が高い試料の合成が必要不可欠であると考えている.

4. まとめと今後の展望

①Li過剰原料, ②格子不整合の大きな基板, ③酸素雰囲気下非加熱前駆体合成, ④ポストアニール, という4要素を持つ合成手法を用いることで, 層状岩塩型LiNiO₂のエピタキシャル薄膜の合成に成功した. 電気伝導性は絶縁体的であり, 多結晶の報告値と一致した.

今後はさらにアニール条件を精密化し, より高品質なエピタキシャル薄膜を合成するとともに, 本質的な伝導性を明らかにしたい. また, Liイオンの脱挿入による物性制御を検討する予定である. さらに展開として, スピネル型LiNi₂O₄エピタキシャル薄膜の合成が考えられる. バルク合成ではLiを脱離させた層状岩塩型Li_{0.5}NiO₂を熱処理することで得られるが[15], 電気化学的反応性を除く物性がほとんど明らかになっておらず, 3次元系のフラストレーションや混合原子価に由来する現象に興味を持たれる. すでにスピネル型MgAl₂O₄基板上にエピタキシャル成長できる結果が得られているので, 今後の課題として取り組む予定である.

参考文献

1. P. Kalyani and N. Kalaiselvi, *Sci. Tech. Adv. Mater.* **6**, 689 (2005).
2. M. Bianchini *et al.*, *Angew. Chem. Int. Ed.* **58**, 10434 (2019).
3. A. Rougier *et al.*, *J. Electrochem. Soc.* **143**, 1168 (1996).
4. D. Li *et al.*, *Nature* **572**, 624 (2019).
5. R. E. Schaak *et al.*, *Nature* **424**, 527 (2003).
6. J. B. Goodenough *et al.*, *J. Phys. Chem. Solid* **5**, 107 (1958).
7. W. Li *et al.*, *Phys. Rev. B* **46**, 3236 (1992).
8. D. S. Adipranoto *et al.*, *Solid State Ion.* **262**, 92 (2014).
9. M. Morcrette *et al.*, *J. Appl. Phys.* **88**, 5100 (2000).
10. N. Shiraishi *et al.*, *J. J. Appl. Phys.* **49**, 108001 (2010).
11. Y. Takahashi *et al.*, *J. Solid State Chem.* **160**, 178 (2001).
12. T. A. Hewston *et al.*, *J. Phys. Chem. Solid.* **2**, 97 (1987).
13. J. Molenda *et al.*, *Solid State Ion.* **146**, 73 (2002).
14. M. M. Mallick and S. Vitta, *Bull. Mater. Sci.* **41**, 150 (2018).
15. R. Kanno *et al.*, *Solid State Chem.* **110**, 216 (1994).

浅田研究室 2020 年度研究報告

未来産業技術研究所 浅田研究室

<http://www.pe.titech.ac.jp/AsadaLab/>

構造を簡略化した共鳴トンネルダイオードテラヘルツ発振器とメタマテリアルとの融合

1. 背景・目的

電波と光の境界領域であるテラヘルツ(THz)周波数帯は分光分析・イメージング・超高速無線通信などさまざまな応用が提案されており、今後の発展が大きく期待される分野である[1]。コンパクトなコヒーレント光源は、これらの THz 応用のキーコンポーネントで、電子デバイスと光デバイスの両方から光源の研究が行われている。光デバイスでは量子カスケードレーザ[2]-[4]が、また、電子デバイスでは HBT、HEMT、Si-CMOS などのトランジスタが盛んに研究され、動作周波数が伸びている[5],[6]。共鳴トンネルダイオード(RTD)も室温 THz 光源の候補のひとつであり[7]-[15]、他の電子デバイスと比べて更に高い周波数動作が可能である。我々は、低損失共振器を用いることで、2 THz に迫る基本波発振を達成し、また、1 THz 帯で 0.7 mW の高出力動作を 89 個の発振器を並べ同時動作させることで達成している。

しかしながら、従来の RTD 発振器では、発振回路と直流バイアス回路を分離するための MIM(metal-insulator-metal)キャパシタが必要であり、作製プロセスが複雑かつ長時間かかる問題があった。そのため、我々は MIM キャパシタを取り除いた RTD 発振器を新たに提案し、構造および製作プロセスの簡素化に成功した。ただ、共振器の損失が大きく 1 THz を超える発振は困難であったため、メタマテリアルを構成するメタ原子である低損失なスプリットリング共振器 (SRR) を用いた新たな RTD 発振器の提案および理論検討を行い、1 THz を超える発振が可能であることを明らかにすると共に、設計に基づいてデバイスを作製し 1.22 THz の発振を得たので報告する。

2. RTDテラヘルツ発振器の構造簡略化

図 1 左に構造簡略化した RTD 発振器の構造を示す。スロットアンテナの中央に RTD が集積され、スロットの両端には安定化抵抗があり低周波での寄生発振を抑圧すると共に、アンテナを形成している。図 1 右に等価回路を示す。この安定化抵抗 R_{sup} はスロットのインダクタンス L_{slot} と直列に接続されており、高周波では L_{slot} のインピーダンスが高くなるため、 R_{sup} での損失は小さくなる。そのため、RTD の持つ微分負性コンダクタンス $-G_{\text{rd}}$ により、損失を打ち消すことが可能となり、テラヘルツの発振が得られる。発振周波数は L_{slot} と RTD のキャパシタンス C_{rd} の並列共振周波数となる。スロットアンテナからの放射は G_{rad} と表され、この消費電力が放射出力となる。

作製プロセスを以下に述べる。まず、RTD 層がエピ成長された Si-InP 基板上に PMGI/ZEP の 2 層レジストを塗布し、電子線描画装置によるパターニング、Ti/Pd/Au の蒸着、およびリフトオフによって RTD およびアンテナ電極を形成する (図 2 左①)。次に、再度 PMGI/ZEP の塗布および露光を行い (図 2 左②)、反応性イオンエッチングによって安定化抵抗を形成する (図 2 左③)。最後に、ウェットエッチングにより RTD メサおよびエアブリッジを形成する (図 2 左④)。MIM のあった以前の構造ではプロセスにおけるパターニングの露光が 6 回であったのが、この構造のプロセスでは 2 回に大幅に削減された。作製したデバイスの光学顕微鏡写真を図 2 右に示

す。パターンのズレなど無く綺麗にデバイスが形成できていることが分かる。

作製したデバイスについて、液体ヘリウム冷却ボロメータとフーリエ赤外分光装置を用いて発振周波数を測定した。RTD 面積を縮小することで周波数は向上し、最大で 956 GHz の発振が得られた。また、実験で得られた周波数と、等価回路モデルから算出した周波数は良い一致を示した。

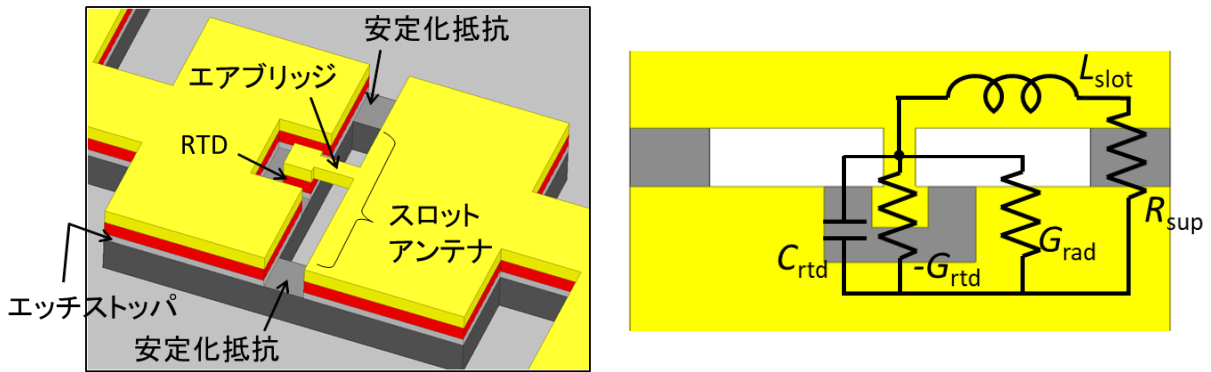


図 1 構造を簡略化した RTD テラヘルツ発振器の構造と等価回路

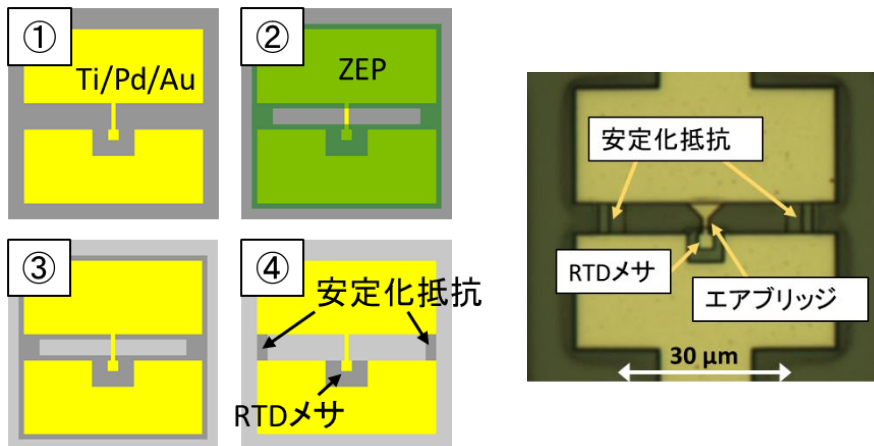


図 2 デバイス作製プロセスと作製した発振器の光学顕微鏡写真

3. スプリットリング共振器集積発振器

前節で示したように、簡易構造で大幅なプロセスの簡単化が出来たが、共振器の損失が大きく得られる最大の発振周波数は 1 THz 未満である。そのため、メタ材料を構成するメタ原子である低損失な SRR を集積した新たな発振器を提案し、同様のプロセスでデバイス作製を行った。図 3(a)に作製した RTD 発振器の光学顕微鏡像を示す。SRR の中央に RTD が集積され、SRR の外側には放射ためのコプレーナストリップ線路アンテナが形成されている。SRR 両端には安定化抵抗があり低周波での寄生発振を抑圧している。図 3(b)に作製した RTD 発振器の SEM 写真を示す。RTD の上部電極をつなぐエアブリッジが綺麗に形成されていることが分かる。

デバイスは SRR 設計を固定し RTD 面積を変えたものを作製した。図 4 に発振周波数の RTD メサ面積依存性を示す。面積を縮小すると容量が小さくなり周波数が向上し、周波数限界は 1.22 THz まで到達することが分かった。1.22 THz の発振スペクトルも図 4 右に示す。コプレーナストリップ線路アンテナの負荷と整合する 0.9 THz において発振出力がピークとなり、そこでは約 30 μW の出力が得られた。実験結果は理論計算と良く一致して

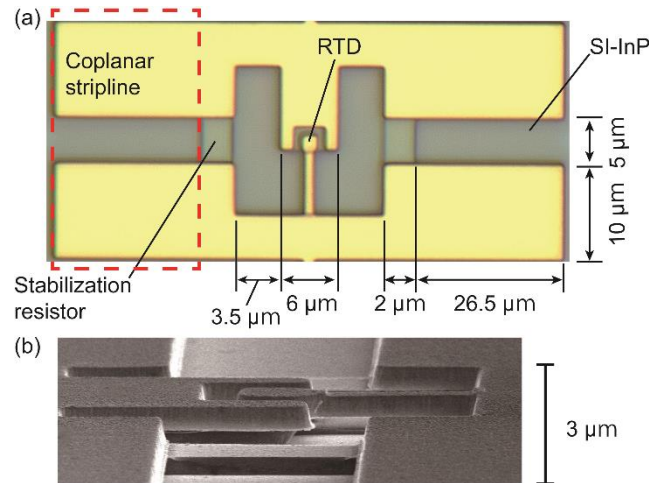


図3 (a)SRR 集積発振器の光学顕微鏡写真と(b)SEM 写真

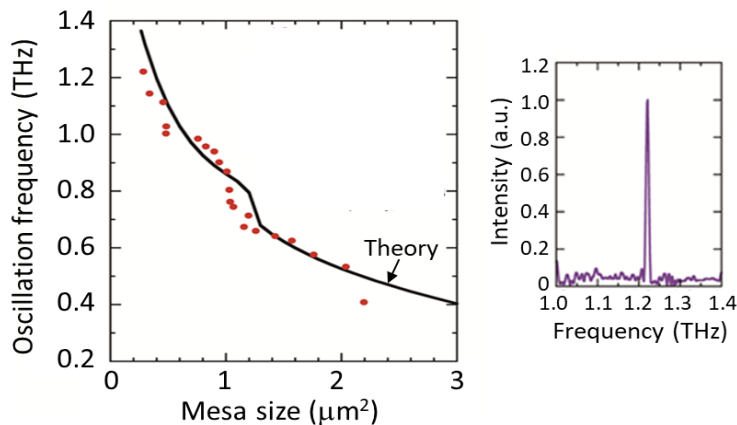


図4 発振周波数のRTDメサ面積依存性

いる。今後、SRR 構造に対する依存性や変調特性などを明らかにし、無線通信などのテラヘルツ応用を実施する予定である。また、本構造は、平面アレイに容易に拡張が可能であり、アクティブなメタマテリアルとしての発展が期待できる。

参考文献

- [1] M. Tonouchi, Nat. Photonics, **1**, 97, 2007.
- [2] R. Köhler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfeld, A. G. Davies, D. A. Ritchie, R. C. Iotti, and F. Rossi, Nature, **417**, 156, 2002.
- [3] B. S. Williams, Nat. Photonics, **1**, 517, 2007.
- [4] L. Bosco, M. Franckić, G. Scalari, M. Beck, and A. Wacker, J. Faist, Appl. Phys. Lett., **115**, 010601, 2019.
- [5] L. A. Samoska, IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol., **1**, 9, 2011.
- [6] U. R. Pfeiffer, Y. Zhao, J. Grzyb, R. Al Hadi, N. Sarmah, W. Förster, H. Rucker, B. Heinemann, ISSCC Dig. Tech. Papers, 256, 2014.
- [7] E. R. Brown, J. R. Sönderström, C. D. Parker, L. J. Mahoney, K. M. Molvar, and T. C. McGill, Appl. Phys. Lett., **58**, 20, 1991.
- [8] M. Reddy, S. C. Martin, A. C. Molnar, R. E. Muller, R. P. Smith, P. H. Siegel, M. J. Mondry, M. J. W. Rodwell, H. Kroemer, and S. J. Allen, IEEE Electron Device Lett., **18**, 218, 1997.
- [9] S. Suzuki, M. Asada, A. Teranishi, H. Sugiyama, and H. Yokoyama, Appl. Phys. Lett., **97**, 242102, 2010.
- [10] M. Feiginov, C. Sydlo, O. Cojocari, and P. Meissner, Appl. Phys. Lett., **99**, 233506, 2011.
- [11] Y. Koyama, R. Sekiguchi, and T. Ouchi, Appl. Phys. Express, **6**, 064102, 2013.
- [12] T. Maekawa, H. Kanaya, S. Suzuki, and M. Asada, Appl. Phys. Express, **9**, 024101, 2016.

- [13] R. Izumi, S. Suzuki, and M. Asada, Int. Conf. Infrared, Millimeter, and THz Waves, MA3.1, Cancun, Mexico, Aug. 2017.
- [14] S. Suzuki, M. Shiraishi, H. Shibayama, and M. Asada, IEEE J. Selected Topics Quantum Electron., **19**, 8500108, 2013.
- [15] K. Kasagi, S. Suzuki, and M. Asada, J. Appl. Phys. 125, 151601, 2019.
- [16] T. Van Mai, Y. Suzuki, X. Yu, S. Suzuki, and M. Asada, J. Infrared Milli. Terahz. Waves, **41**, 1498, 2020.

工学院電気電子系小寺研究室 2020 年度研究報告書

電気電子系 小寺哲夫

<http://www.quantum.ee.e.titech.ac.jp>

【背景・目的】

近年、量子力学的な特性を利用して、超並列演算を行う量子コンピュータが大きな注目を集めている。量子コンピュータを実現するためには、量子的な重ね合わせや量子もつれといった量子論特有の現象を積極的に情報処理に利用する必要がある。量子情報処理を担う量子ビットの候補として様々な物理系が研究の対象となっているが、その中でも半導体量子ドット中の電荷スピンは、比較的長いコヒーレンス時間を持つ($\sim 10 \mu\text{s}$)、物理的に小さい($\sim 100 \text{ nm}$)、高速な量子ビット操作が可能である($\sim 10 \text{ MHz}$)、といった利点から有望な系とされ研究が盛んに行われている。

本研究室では、核スピンの少なく長いコヒーレンス時間が期待される IV 族半導体を用いた量子ドットデバイスを作製し、スピン量子ビット実現に向けた基盤技術の開発や物理の解明に取り組んでいる。IV 族半導体の内、シリコンを用いた量子ドットでは、silicon-on-insulator(SOI)基板上をエッチングすることで、電荷センサ、サイドゲートを集積した物理形成シリコン量子ドットと呼ばれる構造を作製し、研究を行っている。物理形成量子ドットは、他の量子ドット構造に比べ、ゲート数を削減でき、将来的な量子ビットの大規模集積化に有利であると考えられている。また、キャリアの閉じ込めが強く、比較的高温で動作することができるという利点がある。また、ゲルマニウムを用いた量子ドットについてもデバイスの作製・測定を進めている。この構造では、Ge/SiGe ヘテロ構造基板上に絶縁膜を挟んで微小ゲートを堆積し、量子井戸中のポテンシャルを制御することで、量子ドットを形成する。こちらの基板では、正孔の有効質量が小さく、また、大きなスピン軌道相互作用による高速なスピン操作が可能になる。本年度は、スピン操作に向けてシリコン物理形成量子ドット中の正孔スピン共鳴、ゲルマニウム量子ドットデバイスの開発を行った。加えて、スピン読み出しに向けて、センサと量子ドットの物理的な結合によって感度を向上させたデバイスの作製、RF 反射測定における多重化技術の開発、オペアンプを使用した極低温 IV アンブの開発を行った。

【物理的に形成された p 型シリコン二重量子ドットにおける正孔スピン共鳴】

東工大¹、産総研² 田所 雅大¹、鈴木 優作¹、西山 伸平^{1,2}、加藤 公彦²、
柳 永勲²、村上 重則²、森 貴洋²、溝口 来成¹、米田 淳¹、小寺 哲夫¹

p 型シリコン量子ドットは強いスピン軌道相互作用(SOC)を持つため、交流電場のみでのスピン操作が実現されてきた [1]。本研究では物理的に形成された p 型シリコン二重量子ドット (DQD, Fig. 1) を作製し、それをを用いてスピン共鳴を行った。測定では、まず、パウリスピンブロッケード (PSB) 領域を観測し、その領域においてデバイス上部に作製されたトップゲート (TG) からマイクロ波(MW)を印加した。PSB 領域ではドット内のスピン状態によって選択的に正孔の輸送が抑制されている。また、MW は SOC を介すことで正孔にとっては有効交流磁場として作用する。外部磁場に比例する正孔スピンのゼーマンエネルギーに対応する周波数の交流電場が印加されたとき、Fig. 2 に示すように電流ピークが観測された。これは、有効交流磁場によるスピン共鳴で正孔スピンの回転し、PSB の漏れ電流が生じたためである。電流ピークは 3 つ見られ、これらは二重量子ドット中の正孔のエネルギー準位差に対応していると考えられる。このスピン共鳴を利用した任意のスピン操作により、大規模集積化に有利である物理的に形成された p 型シリコン量子ドット中のスピン量子ビットの実現が期待される。

[1] R. Maurand, et al. *Nat. Commun.* **7**, 13575 (2016).

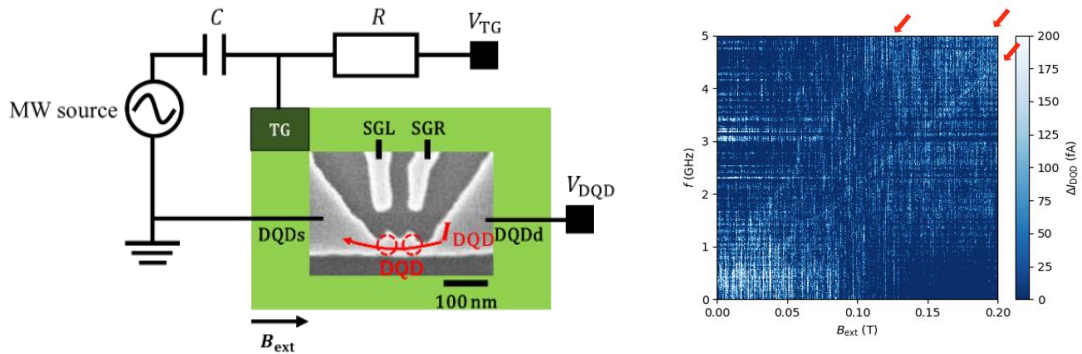


Fig. 1 Scanning electron micrograph of the device and measurement circuit. To apply a MW signal and DC offset voltage at the same time, we added a bias tee with $R = 1 \text{ k}\Omega$ and $C = 4.7 \text{ }\mu\text{F}$. The measurement temperature is 300 mK. The black arrow shows the direction of external magnetic field, B_{ext} .

Fig. 2 I_{DQD} measured as a function of MW frequency and B_{ext} . The output MW power is -10 dBm and attenuated in the AC line. We have subtracted the background current (estimated from the frequency dependence observed at $B_{\text{ext}} = 100 \text{ mT}$ and the magnetic field dependence at $f = 5 \text{ GHz}$)

【ゲルマニウム量子ドットの正孔輸送特性】

東工大 松岡 竜太郎、溝口 来成、小寺 哲夫

ゲルマニウムの重い正孔は有効質量が小さいため顕著な量子効果を示すだけでなく [1]、強いスピン軌道相互作用による高速動作が可能であり [2]、その将来性が期待されている。また、その強いスピン軌道相互作用によって交流磁場なしでのスピン操作が可能であり [2]、追加構造が不要で簡素な構造をとることができる。本研究では、ゲルマニウム量子ドットを作製し、ゲート電圧を変化させることでその正孔輸送特性を調べた。

Fig. 3 に本研究で作製した量子ドットの SEM 画像を示す。各ゲートは電子線リソグラフィの後、Ti/Au を電子線蒸着させることで作製した。この構造では、量子ドット直上に設置されたゲート (SGL, SGM, SGR) が他のゲートから分離しており、将来集積化に有利なゲート電極を利用したスピン読み出しへの利用が期待される。4.2 K の極低温下において、各ゲートに電圧を加え、ソース-ドレイン間を流れる電流値 I_{SD} を測定した (Fig. 4)。測定の結果、クーロンダイヤモンドと呼ばれる電流が抑制される現象が観測された。これはデバイス内で電荷が 0 次元に閉じ込められ、量子ドットが生じている状態を示している。また、チャージングエネルギーは約 4.0 meV と求められ、形成された量子ドットの直径は約 70 nm とわかった。これは SEM 像から得られたデバイス構造を矛盾しない値となっている。この結果は、量子ドット直上のゲートが分離した構造でも量子ドットが作製できることを実証し、より複雑なデバイス構造の作製にも応用が可能であることを示唆している。

[1] M. Lodari, et al., *Phys. Rev. B* **100**, 041304 (2019).

[2] H. Watzinger, et al. *Nat Commun.* **9**, 3902 (2018).

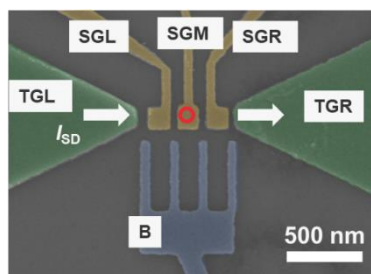


Fig. 3. Scanning electron micrograph of germanium quantum dots. Formed quantum dot is highlighted by the red circle. The yellow gates control the potential of the quantum dots, and the blue gates control the coupling strengths between quantum dots and between dot and lead. The green top gates induce carriers in quantum well under the gates.

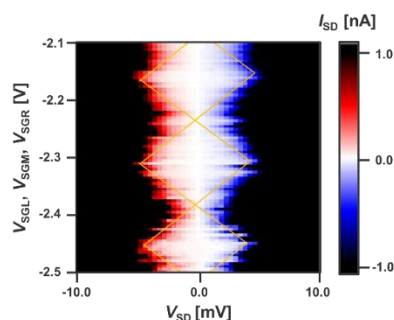


Fig. 4. Coulomb diamond measurement result. The current I_{SD} flowing through the device was measured when the voltage V_{SD} , V_{SGL} , V_{SGM} , and V_{SGR} were swept. The rhombus-shaped current suppression region in the orange line can be seen.

【物理的に結合した電荷センサを持つ物理形成シリコン量子ドットの特性評価】

東工大¹, 産総研² 溝口 来成¹, 西山 伸平^{1,2}, 加藤 公彦²,
柳 永勲², 森 貴洋², 小寺 哲夫¹

物理形成量子ドットを用いたスピン量子ビットの読み出しに向けた先行研究では、電荷センサを用いて単発のトンネリングを捉えることに成功している[1]。しかしながら、高速な量子ビットの測定のためにはより高感度なセンサが必要となる。

本研究では、電荷センサ(CS)とターゲットとなる QD を物理的に結合したデバイスを作製し(Fig. 5)[2]、その特性を 4.2 K で評価した。物理的な結合により CS-QD 間の距離の縮小が可能になることで、静電結合が強まり、CS の感度向上が期待される。測定では 4.2K において、QD と CS の電流(I_{QD} と I_{CS})に加えて、LC 共振回路を結合した CS の反射率の変化のトップゲート電圧(V_{TG})依存性を調べた。 V_{TG} が小さいうちは QD に電流が流れず、ピーク状の I_{CS} とそれに対応した反射率の小さな変化が観測されている。より V_{TG} が大きくなり QD にも電流が流れるようになると、それに応じて I_{CS} の電流に大きな変化が現れ(Fig. 6(b) 青い矢印)、また、反射率も I_{QD} に対応して大きく変化している。これらの変化は QD と CS のトンネル結合によるものと考えられる。今後はこのような構造を用いて高感度な電荷センシングを行う。

[1] 溝口ほか、第 67 回応用物理学会秋季学術講演会、13a-A305-3、2020 年。

[2] A. Morello, et al. *Nature* **467**, 687 (2010).

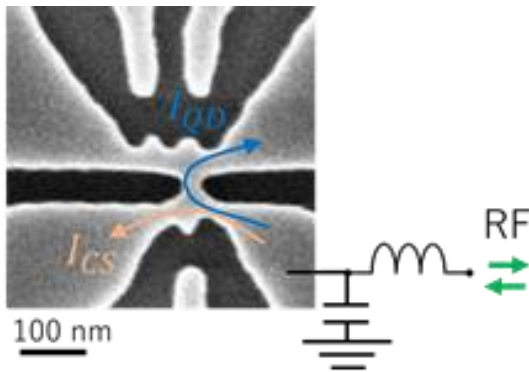


Fig. 5 Scanning electron micrograph with LC tank circuit for RF reflectometry. Current can flow through two paths (I_{QD} and I_{CS}). The left reservoir of the target quantum dot is open.

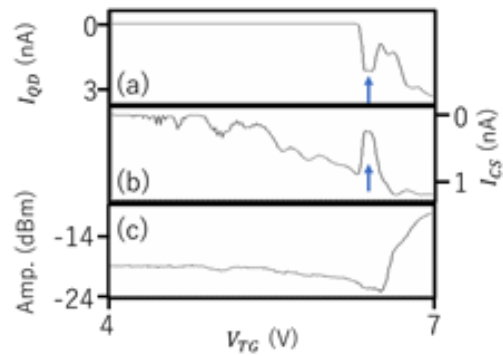


Fig. 6 QD current, I_{QD} (a), CS current, I_{CS} (b), and amplitude of reflected RF signal (c) as a function of top gate voltage, V_{TG} at 4.2 K. $V_{DSCS} = 1$ mV, $f_{RF} = 276.12$ MHz

【反射係数の複素平面状における RF 反射測定の多重化】

東工大 武田 裕貴、平山 勝登、田所 雅大、溝口 来成、小寺 哲夫

高速なスピン量子ビットの読み出しには RF 反射測定が用いられている[1]。シンプルな発想では、複数の量子ドットの読み出しのため、RF 反射測定を行う際にはインピーダンス整合された配線が各ドットに対して必要となるが、集積化された量子ドットの数と同数の配線を室温から極低温下に接続することは熱流入等の観点から望ましくない。そこで、単一の同軸線から複数ドットの情報を読み出す技術として、それぞれ異なる共振周波数を持つ複数の共振回路を用いた周波数多重化及び MOSFET を用いたスイッチングによる切り替えなどが提案されている[2]。しかし後者の技術においては各量子ドットの情報を時間で分けて読み出しを行うため、集積化を行った数に比例して読み出しにかかる時間が増加してしまうことが考えられる。

本研究では複数量子ドットからの情報を同時に読み出せる方式として、反射係数の複素平面状での多重化の検討を行った。この方式は PSK(位相偏移変調)のように複数の信号に対して二次元平面状での位相自由度をもとに多重化を行うことを目的としている。まず信号多重化を行うための回路を Fig. 7 に示す。この回路においてそれぞれのドットの抵抗 R_{di} に対する反射率 Γ を考えたとき、同じだけ R_{d1}, R_{d2} が変化しても、それらに対応して異なる位相変化が起き、同時に信号を読み出すことができると考えられる。実際に二つの量子ドットに対し、片方に $1\text{ k}\Omega$ の抵抗を挿入した場合の結果を Fig. 8 に示す。この結果から抵抗の挿入による反射係数の変化率の位相変化が実現可能であると考えられる。

今後の展望として、多重化された各信号強度改善に向けた回路の最適化、およびデバイスの改善を行い、実際に多重化された信号による同時情報読み出しの実現が期待される。

[1] R. J. Schoelkopf et al. *Science* **280**, 1238 (1998)

[2] S. Schaal, et al., *Nature Electronics* **2**, 236 (2019)

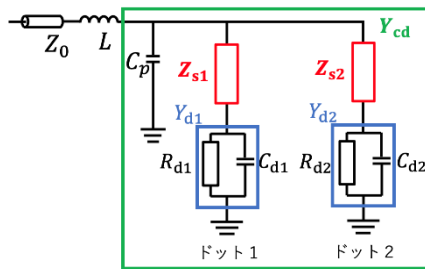


Fig. 7 schematic of circuit for multiplexing. $Z_{s1(2)}$ is additional impedance for multiplexing. Blue frame indicated equivalent circuit of quantum dot. Green frame indicates the admittance of the load circuit except for inductance

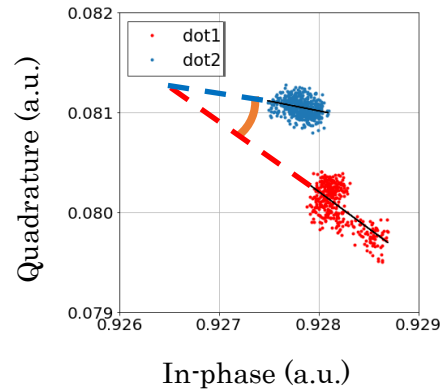


Fig. 8 complex plane of reflection coefficient from the circuit in Fig. 7. Conductance changes by gate voltage for dot1 and dot2 are shown (blue and red dots, respectively). The directions of changes for the dots are different from each other, which induced the additional impedances.

【極低温下におけるオペアンプを用いた量子ドット中の電荷状態測定】

東工大 菊地 航行、高橋 洋貴、溝口 来成、米田 淳、小寺 哲夫

量子ドットデバイスでは、DC 信号による量子ビットの読み出しの場合、100 pA オーダーの電流信号を読み取る必要がある。このような微小信号の読み出しにはアンプを用いて増幅することが実用上不可欠である。先行研究では、雑音や測定帯域の問題を解決するため、アンプを極低温下に配置することも行われてきた。本研究では市販のオペアンプ利用した IV アンプを極低温下を設置し、デバイスの電流測定を行った。

今回の測定では、オペアンプにルネサスエレクトロニクス社の ICL7611 を用いた IV アンプを作製し、量子ドットの特性を調べた。このオペアンプは先行研究で、大きな電源電圧を必要とするものの、低温での動作が確認されている[1]。本研究では、この ICL7611 を用いて、プリント基板上に抵抗を挿入した負帰還回路を作製し、極低温で IV アンプとして利用し (Fig. 9 (右側))、量子ドットデバイスの $I_d - V_g$ 測定を行った。その量子ドットデバイスには当研究室で作製及び動作の確認を行った P 型の単一量子ドットデバイスを使用した (Fig. 9 (左側))。結果として Fig. 10 に示すように、量子ドットの電流値に対応した IV アンプの出力に成功した。この時、IV アンプの増幅率は 2.95 V/nA であった。今後は、量子ビットの読み出しに向け、ノイズの低減について評価を行っていく。

[1] J.T. Hastings, and K - W. Ng., *Rev. Sci. Instrum.* **66**, 3691 (1995)

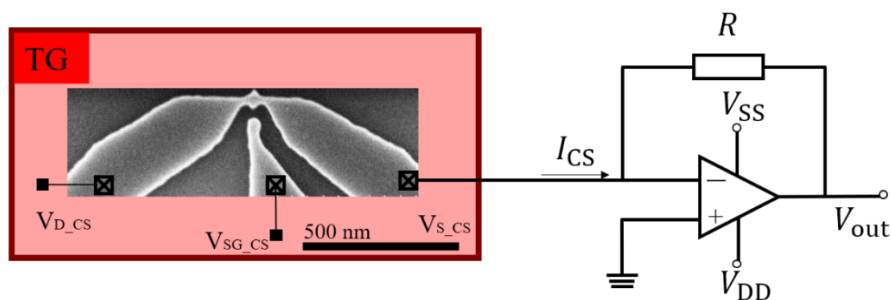


Fig. 9 Quantum dot connected to IV amplifier.

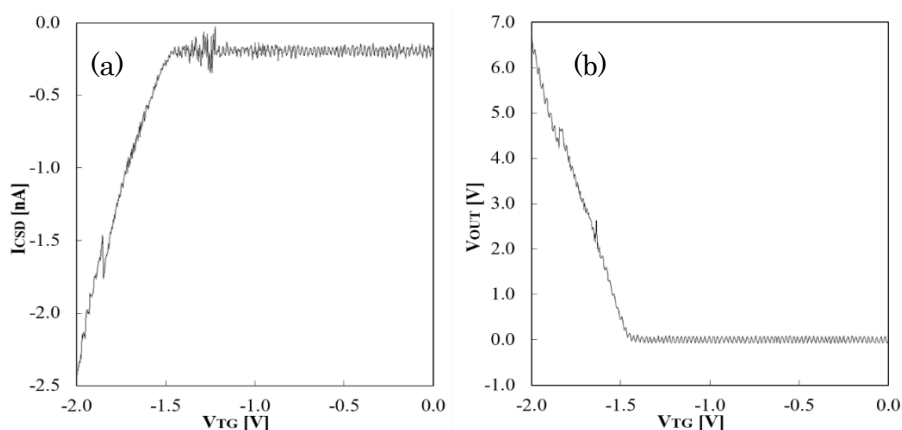


Fig. 10 (a) Current through quantum dot and (b) output voltage from the IV amplifier as a function of top gate voltage of the quantum dot.

理学院物理学系 藤澤研究室 令和2年研究報告

理学院物理学系, 極低温研究支援センター 藤澤 利正

<http://fujisawa.phys.titech.ac.jp/>

藤澤研究室では、半導体ナノ構造を用いた低次元電子系の物性研究をおこなっている。特に、人工的に設計されたポテンシャル中の電子のダイナミクスを主な研究テーマとしており、新しい量子電子輸送現象を明らかにするとともに、ナノエレクトロニクス・量子情報技術・プラズモニクス・スピントロニクス・熱輸送技術への発展を目指し、下記のサブテーマのもとに研究を進めている。

量子ホール効果エッジチャンネルの非平衡輸送現象に関する研究

二次元電子に強磁場を印加すると、試料の端を沿って電子が流れる伝導モード(エッジチャンネル)が形成される。その電荷密度波であるエッジマグネトプラズモンは量子ホール状態の低エネルギー励起であり、散乱がなく、一方向性を有することから興味深い現象が現れる。このカイラル次元系は、朝永ラッティンジャー流体モデルを実現しうる系としても注目されており、相互作用に起因した特異な非平衡状態や時間応答に注目して研究を進めている。さらに、分数量子ホール領域における分数電荷励起に関する研究を行っている。これらの実験は、時間応答測定、周波数応答測定、自己相関・相互相関の電流雑音測定など、研究室独自の手法によって行っている。

量子ドットの電子状態とフォノンとの相互作用に関する研究

半導体表面の楕円電極に高周波を印加することにより、コヒーレントで単色な表面弾性波フォノン(音響格子振動モード)を発生することができる。このコヒーレントフォノンをナノ構造の電子系(二重量子ドットなど)に照射することにより、共鳴フォノン支援トンネル現象などの電子格子相互作用に起因した輸送現象を研究している。金属周期構造の設計によりフォノン共振器構造を作製し、共振器中での電子格子相互作用や、フォノンと電子系のエネルギー変換、電子系のデコヒーレンスの低減など、新たな電子状態制御方法の開拓を目指している。

これらの研究は、NTT物性基礎研究所・量子固体物性研究グループ、特に村木康二グループリーダー、橋坂昌幸氏、秋保貴史氏などとの共同研究により行っている。また、科研費基盤研究(S)(19H05603)、萌芽研究(17K18751)、新学術領域(計画研究)(15H05854)、東工大極低温研究支援センター、東工大ナノテクノロジープラットフォーム、の支援を受けておこなっている。

今年度の研究活動状況は下記のとおりである。

1. 整数/分数量子ホールY接合における電荷波束の分数化現象

東工大^A, NTT 物性基礎研^B

Chaojing Lin^A, 橋坂昌幸^B, 秋保貴史^B, 村木康二^B, 藤澤利正^A

占有率 $2/3$ の分数量子ホール系では、整数($\Delta v = 1$)チャンネルと分数($\Delta v = 1/3$)チャンネルが結合した複合エッジチャンネル($\Delta v = 2/3$)が形成され、チャンネル間の相互作用と電子散乱によって電荷モードと中性モードが生じる。この複合チャンネルが孤立した整数(1)・分数($1/3$)チャンネルに分岐する量子ホールY接合において、電荷波束の分数化が生じることを報告した[1]。この電荷分数化率が $1/3$ の量子化値を示す点を中心に調べ、モデルとの対応を議論する。

図(a)のように、バルク占有率 $\nu_B = 2/3$ の分数量子ホール系に、ゲート電圧 V_g の印加によって占有率 $\nu_G = 1$ の整数量子ホール領域を形成すると、独立した整数チャンネル(1)と分数チャンネル($1/3$)および結合した複合チャンネル($2/3$)との間にY接合(Y_C, Y_N)が形成される。ゲート電極 G_I に電圧ステップを印加することで電荷波束を生成し、Y接合を通過した後の電荷波束の波形を、ゲート電極 G_D にパルス電圧を印加することで電流 I_D として検出した結果が図(b)である。

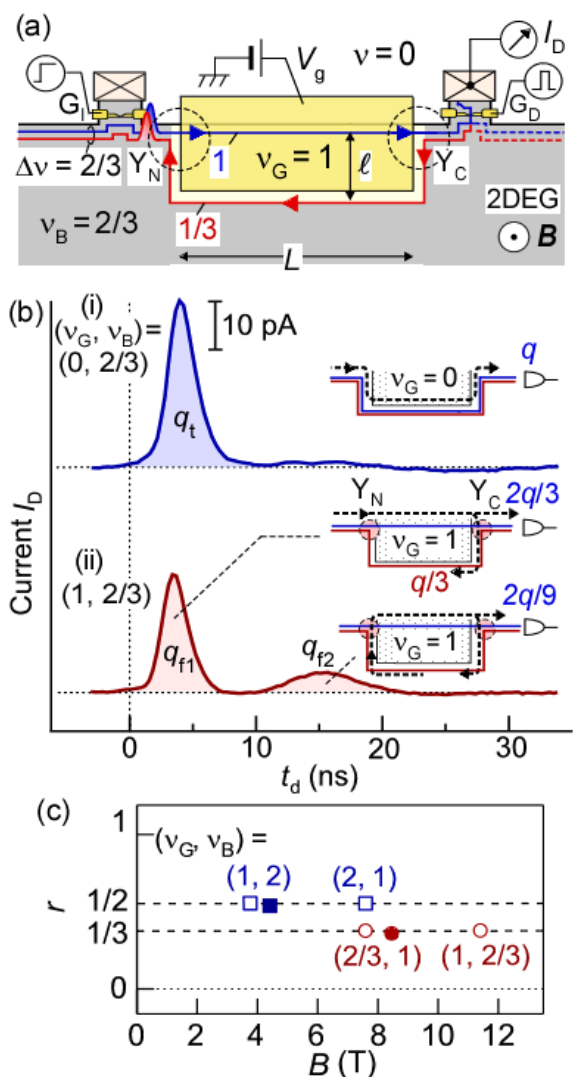
$\nu_G = 0$ における参照実験では、波形(i)のように電荷量 q_t の単一の波束が観測される。 $\nu_G = 1$ で得られる波形(ii)では、2つの波束に分数化の様子がみられ、整数エッジ(1)を伝搬する電荷 q の波束が、接合 Y_C において電荷 $2q/3$ (最初の波束)と $q/3$ (分数エッジ($1/3$)-整数エッジ(1)を周回し、再分数化で2番目の波束 $2q/9$ となる)に分数化している。これらの波束の電荷量(パルス面積) q_{f1} と q_{f2} はそれぞれ $2q/3$ と $2q/9$ にほぼ一致し、 $r = q_{f1}/q_{f2}$ で定義される分数化係数は $r = 0.34 \pm 0.03$ とほぼ量子化値 $1/3$ に近い。この量子化された分数化率は、図(c)の丸印のように様々な条件で再現する。これらの結果は、チャンネル間の相互作用と電子散乱を考慮したモデルとよく適合する[2,3]。また、通常、チャンネル間散乱が無視できる整数量子ホール系での分数化率は量子化値をとらないが、チャンネル間散乱が顕著な試料では図(c)の四角印のように量子化値($r = 1/2$)を示すことも確認した。

本研究は、科研費(JP15H05854, JP19H05603)、東工大ナノプラットフォームの支援を受けた。

[1] C. J. Lin 他, 2020 年春物理学会 17aA43-6 (2020).

[2] C. L. Kane *et al.*, Phys. Rev. Lett. 72, 4129 (1994).

[3] C. J. Lin *et al.*, Nature Commun. 12, 131 (2021).



2. 量子ポイント接合を用いた量子ホールエッジチャンネルの熱輸送制御

東工大理^A、NTT 物性基礎研^B

小沼亮太^A, Chaojing Lin^A, 秦徳郎^A, 平澤太一^A, 秋保貴史^B, 村木康二^B, 藤澤利正^A

量子ホールエッジで見られるカイラルな 1 次元伝導チャンネルは、普遍的な熱伝導度を示し[1]、並走するチャンネル間での熱輸送[2]を示すことから、熱電機関や熱輸送回路などへの応用が期待される。本研究では、量子ホールエッジチャンネルの熱輸送を量子ポイント接合によって制御できることを示す。実験は、熱源用量子ポイント接合でチャンネルの電子系を加熱し、熱輸送制御用量子ポイント接合を通過したあとのチャンネルの熱流を量子ドットによるエネルギー分光測定で評価した。

図1のように、AlGaAs/GaAs ヘテロ接合二次元電子系に磁場 $B (= 1.9 \text{ T})$ を印加して、占有率 $\nu = 4$ の量子ホール状態を用いた熱輸送回路を形成した。熱源用量子ポイント接合(QPC1)にバイアス電圧 $V_S (= 0.3 \text{ mV})$ を印加すると、チャンネルに電流と熱流が注入される。チャンネル間の相互作用によって、係数 η_{ij} で決まる割合でチャンネル i からチャンネル j への熱輸送がおこる。各チャンネルの熱流は、熱輸送制御用量子ポイント接合(QPC2)によって制御される。その後におこるチャンネル間熱輸送を経た終状態について、チャンネル 1 のエネルギー分布関数を量子ドット QD により評価した。得られた電子系のエネルギースペクトルはフェルミ分布関数に近いことから、フェルミ分布関数で評価される温度 T を用いて熱流 $J = (\pi^2/6h)k_B^2 T^2$ を求めた。図 2 は、QPC2 のコンダクタンス G と熱流 J を示しており、ゲート電圧 V_{P2} によって、 G には 4 段、 J には 2 段の階段状変化が見られる。これらは、チャンネル 1 と 2 の間の結合が支配的であるとともに、QPC によって熱輸送を制御できることを示している点で興味深い。この系での熱流 J を定量的に評価することによって、チャンネル間の相互作用の理解を深めるとともに、熱輸送回路などへ発展が見込まれる。

本研究は科研費(JP15H05854, JP19H05603)、東工大ナノプラットフォームの支援を受けた。

[1] S. Jezouin *et al.*, Science **342**, 601 (2013).

[2] K. Itoh *et al.*, Phys. Rev. Lett. **120**, 197701 (2018).

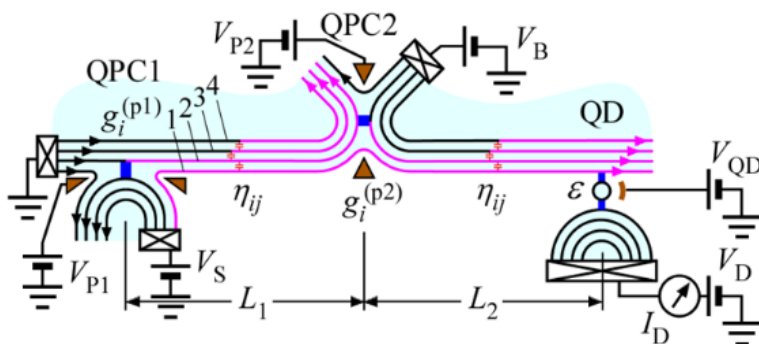


図 1 熱輸送回路の概念図。QPC1 で発生した熱は、チャンネル間熱輸送(η_{ij})、QPC2 による熱輸送制御を経て、量子ドット(QD)による分光測定で評価される。用いた試料は、 $L_1 = L_2 = 2 \mu\text{m}$ 。

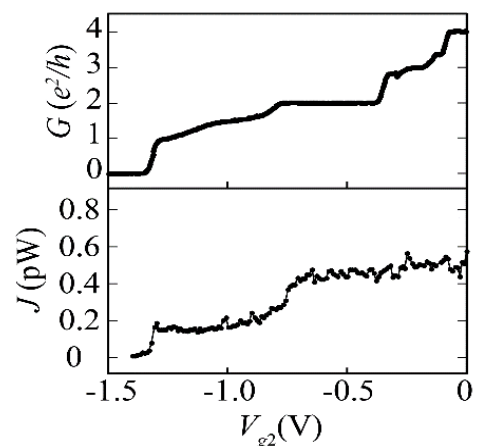


図 2 QPC2 のコンダクタンス G (上) と、チャンネル1の熱流 J (下)。階段状の電流制御、熱流制御を示す。

3. 占有率 2 の量子ホールエッジチャンネルにおけるエネルギー緩和測定

東工大理^A, NTT 物性基礎研^B

平澤太一^A, Chaojing Lin^A, 秦徳郎^A, 小沼亮太^A, 秋保貴史^B, 村木康二^B, 藤澤利正^A

占有率 2 の量子ホールエッジチャンネルは、カイラルな電子輸送・熱輸送を示し、朝永ラッティンジャー流体 (TLL) の性質を示すなど、興味深い系である。外界との結合が比較的弱く、輸送距離 5-10 μm 程度で僅かな電子エネルギーの緩和が見られる程度である [1]。本研究では、様々な輸送距離 $L = 0.3 \sim 200 \mu\text{m}$ を経た後のエネルギー分布を測定することで、エネルギー緩和現象についての理解を深めることを目的とした。

GaAs/AlGaAs ヘテロ構造の 2 次元電子系に垂直強磁場を印加した占有率 2 の量子ホール系において (図 a)、量子ポイントコンタクト (QPC) からバイアス電圧 $V_S (= 0.1 \text{ mV})$ で電荷を注入すると、スピン電荷分離長 ($l_{sc} \sim 1 \mu\text{m}$)

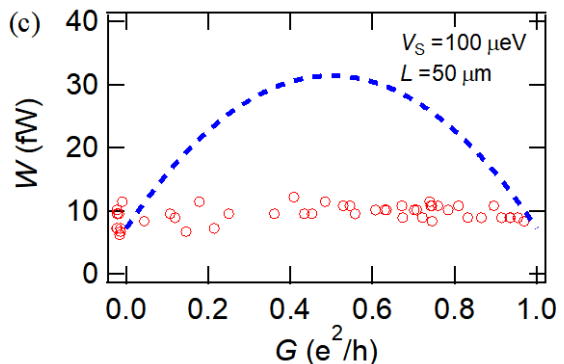
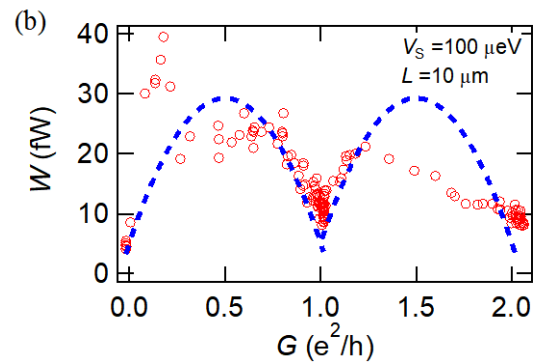
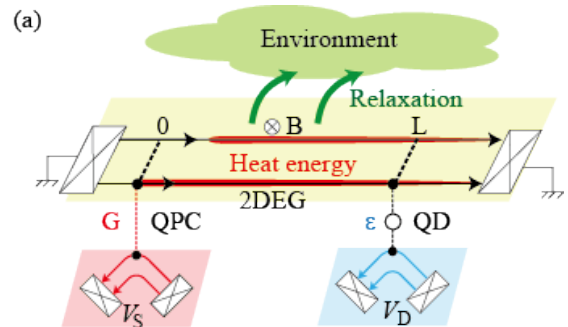
(a) を超えた輸送距離で、熱エネルギーは 2 つのチャンネルに分配される [1]。より長い輸送距離では、環境との結合によりエネルギー緩和が起こると考えられる。量子ドットを用いたエネルギー分光により電子のトンネル状態密度を測定すると、フェルミ分布関数に近いスペクトルが得られ[1,2]、

その温度 T から見積もられる熱流 $W = (\pi^2/6h)k_B^2 T^2$ を評価した。図 b は、輸送距離 $L = 10 \mu\text{m}$ における熱流 W の QPC 伝導度 G 依存性であり、QPC がトンネル領域となる条件で高い熱流を示している。また、2 つのチャンネルに熱エネルギーが等分配され、外界へのエネルギー緩和を無視した場合に期待される熱流 (点線) と同程度であることから、この距離では、顕著なエネルギー緩和を示していないことがわかる。一方で、輸送距離 $L = 50 \mu\text{m}$ における熱流 W は、ベース温度での熱流程度に減少していることから、エネルギー緩和長はこれらの間にあると考えられる。系統的な熱流測定を行うことにより、より正確な緩和長を見積もることができるとともに、緩和現象のメカニズムを明らかにできると期待している。

本研究は科研費(JP15H05854, JP19H05603)、東工大ナノテクノロジープラットフォームの支援を受けた。

[1] K. Itoh *et al.*, Phys. Rev. Lett. **120**, 197701(2018).

[2] C. Altimiras *et al.*, Nat. Phys. **6**, 34 (2010).



図(a) 測定系の概念図 (b) QPC コンダクタンス G に対する熱流 W ($L = 10 \mu\text{m}$) (c) QPC コンダクタンス G に対する熱流 W ($L = 50 \mu\text{m}$)

4. 量子ホールエッジチャネルを用いた量子ドット熱電機関における仕事率のトンネル速度依存性

東工大理^A、NTT 物性基礎研^B

小沼亮太^A、Chaojing Lin^A、秦徳郎^A、南陽貴^A、秋保貴史^B、村木康二^B、藤澤利正^A

量子ドットなどのナノ構造を用いた熱電機関は、高い熱効率への期待や、量子デバイスにおける熱力学への興味から、幅広く研究されている。本研究では、量子ポイント接合(QPC)の熱源と量子ドット(QD)の熱電機関を、量子ホール(QH)エッジの一次元カイラル熱輸送で結合した QH-QD 熱電機関の基本特性を評価した。

図 1(a)のように、AlGaAs/GaAs ヘテロ接合二次元電子系に磁場 $B (= 3.7 \text{ T})$ を印加して、占有率 $\nu = 2$ の量子ホール状態を用いた熱集積回路を形成した。適当な透過率 D の QPC にバイアス電圧 V_S を印加すると、チャンネル 1 に電流と熱流が注入される。並走する 2 本のチャンネル間で、クーロン相互作用による熱分配が生じ、 $D \sim 0.5$ では近似的な熱平衡状態に達する[1]。これを高温 T_H の“熱浴”とみなして、QH-QD 熱電機関を評価した。図 1(b)のように、高温のチャンネル 1 (左側) から、QD のエネルギー準位 E_0 を介して、低温 T_C のチャンネル C (右側) へ電子を輸送する。適切な電位差 $\Delta\mu/e$ において、それに逆らう(逆符号の)電流 I_{QD} を得ることで、電気的工作率 $P = -I_{QD} \Delta\mu/e$ を得るとみなすことができる。ここでは、 E_0 、 $\Delta\mu$ 、ならびに左側・右側のトンネル速度 Γ_L 、 Γ_R の調整により、仕事率 P が変化(最大化)する様子を調べた。まず、QD のクーロンダイヤモンド特性[バイアス電圧 $V_C (= \mu_C/e)$ とゲート電圧 V_{QD} に対する電流 I_{QD} の変化]から、QPC による電流注入で発生する電気化学ポテンシャル μ_H を見積もった。 $\Delta\mu = \mu_H - \mu_C$ と E_0 の調整で最大にできる仕事率 $P_{\mu,E}$ は、図 2(b)の挿入図のように、(i)電子トンネル($\mu_H < \mu_C < E_0$)と(ii)正孔トンネル($\mu_H > \mu_C > E_0$)による 2 つの条件で得られる。QD のトンネル障壁を調整する複数のゲート電圧を図 2 横軸のパラメータ V_ε で調整すると、図 2(a)のように Γ_L と Γ_R が増大するのに伴って、図 2(b)のように $P_{\mu,E}$ は増大し最大値を経て減少に転じる様子が観測された。トンネル速度の調整 ($\Gamma_L = \Gamma_R$) などにより、さらに高い仕事率が期待される。

科研費(JP15H05854, JP19H05603)、東工大ナノプラットフォームの支援を受けた。

[1] K. Itoh *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 197701 (2018).

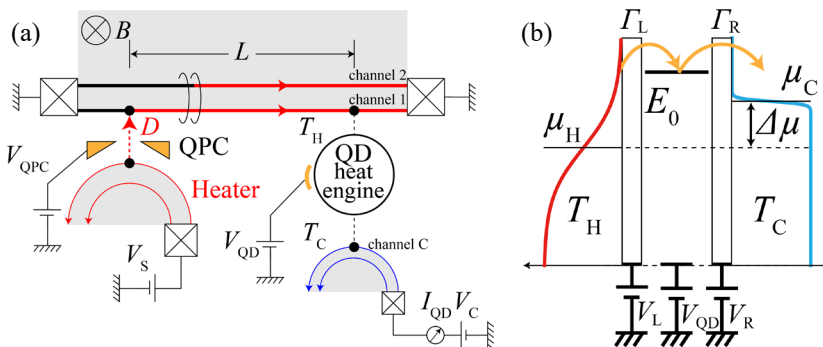


図 1 (a) QH-QD 熱電機関の構成図。(b) QD のエネルギー図。

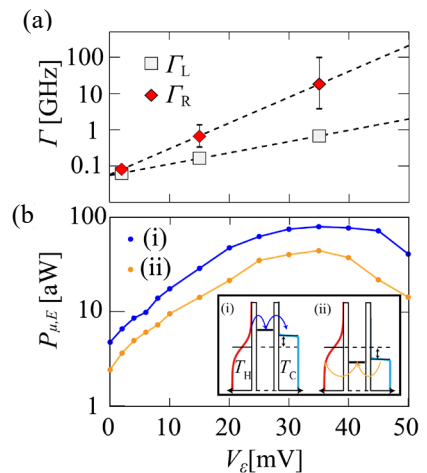


図 2 (a) Γ_L 、 Γ_R と (b) $P_{\mu,E}$ の V_ε 依存性。 V_ε は、図 1(b) の V_L と V_R をともに増加するパラメータ。

5. 占有率 2 の量子ホールエッジチャンネルにおけるホットエレクトロン注入による非熱的狀態

東工大理^A、NTT 物性基礎研^B

平澤太一^A、鈴木光太郎^A、秦徳郎^A、佐藤裕也^A、秋保貴史^B、村木康二^B、藤澤利正^A

ランダウ占有率 2 の並走する量子ホールエッジチャンネルは、朝永-ラッティンジャー流体(TLL)モデルを実現する系として知られ、長寿命な非熱的狀態を示す点で興味深い[1]。本研究では、高エネルギー電子(ホットエレクトロン)を用いた非熱的狀態の生成手法について報告する。

図 1 は、測定系の概念図である。GaAs/AlGaAs ヘテロ接合二次元電子系に磁場 $B (= 5.0 \text{ T})$ を印加して、占有率 2 の量子ホールエッジチャンネル(スピン \uparrow と \downarrow) を形成する。一方のチャンネルにホットエレクトロンを注入する(エネルギー E_{inj} 、入射電流 I_{inj}) と、フェルミ面付近の電子との電子電子(e-e) 散乱により、ホットエレクトロンはエネルギーを失い、フェルミ面付近に電子正孔(eh)励起(紫縦縞)が生じ、それぞれ図の右向きに伝播する。e-e 散乱はエネルギーが低いほど顕著になるため、eh 励起が顕著に生成されるホットスポット(位置 x_{HS}) が現れる[2]。 E_{inj} によって x_{HS} は変化するため、固定位置 $x = L$ に置かれた量子ポイント接合(QPC)又は量子ドット(QD)で、eh 励起生成後のダイナミクスを距離 $(L - x_{HS})$ の依存性として調べることができる。QPC による分析[図 1(c)]では、QPC のトンネル領域(図 2 上: 伝導度 G の遷移領域)で、QPC 電流 I_{QPC} (図 2 下)に I_{inj} を超えるピークが見られ、スピン \uparrow 及び \downarrow のチャンネルにおける eh 励起を示している。スピン \uparrow の eh 励起が最大になる条件($E_{inj} = 22 \text{ meV}$: 赤線)とスピン \downarrow に対する条件($E_{inj} = 15 \text{ meV}$: 青線)の差は、チャンネル間のエネルギー分配に距離 l_{int} を要するためと考えられる。生成された eh 励起の非熱的狀態を調べるため、QD を用いてチャンネル \uparrow のエネルギー分布を評価した。図 3 の電流 I_{QD} には、クーロン振動ピークの左端(点線、化学ポテンシャル μ)の左側($E_{\uparrow} > \mu$)に、緩やかに減少する様子が見られ、フェルミ分布と異なる非熱的狀態の生成を表している。このスペクトルは、 E_{inj} (すなわち、 x_{HS} からの距離)によって大きく変化し、非熱的狀態の特徴的なダイナミクスを示している可能性がある。

本研究は科研費(JP15H05854, JP19H05603)、東工大ナノプラットフォームの支援を受けた。

[1] K. Itoh *et al.*, Phys. Rev. Lett. **120**, 197701 (2018).

[2] T. Ota *et al.*, Phys. Rev. B **99**, 085310 (2019).

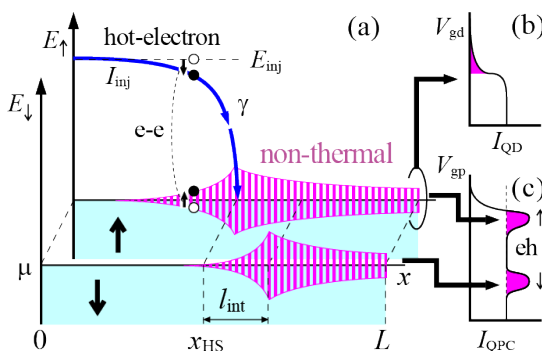


図 1 測定系の概念図。ホットエレクトロンは電子電子散乱(γ)、チャンネル間のエネルギー分配を経て、QPC、QD で分光測定される。用いた試料は $L = 1, 2, 5, 10 \mu\text{m}$ 。

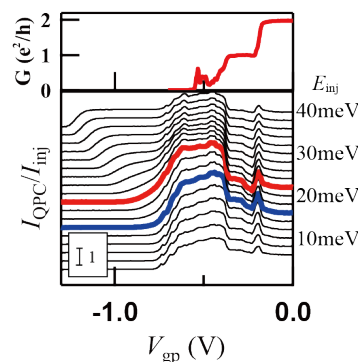


図 2 QPC による分光測定。上: 量子化伝導度ステップ。下: 電子正孔励起による電流のピークが見られる。

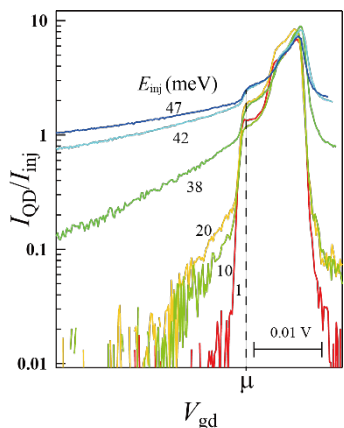


図 3 QD によるチャンネルのエネルギー分布測定。高エネルギー側($E_{\uparrow} > \mu$)の傾きが非熱的狀態を表す。

2020 年度 大熊研究室研究報告

物理学系（極低温研究支援センター） 大熊 哲

<http://www.rcltp.titech.ac.jp/~okumalab/>

1. 熱電効果で探る 2 次元超伝導体の異常金属状態 –量子臨界現象と渦糸状態–

家永 紘一郎 *et al.*

乱れを含む 2 次元超伝導体では、超伝導と局在効果の競合によって磁場印加による超伝導-絶縁体転移(SIT)が起こる。SIT は量子相転移の典型例として知られ、その量子臨界性は専ら電気抵抗測定によって議論されてきた[1]。ところが近年、電気抵抗にはない重要な情報を含む熱電効果の測定が一部のグループによって展開されている[2]。

ところで、アモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ のような、アモルファスでも比較的乱れの弱い超伝導薄膜[3]や、劈開、イオンゲート、分子線エピタキシーなどで作製された結晶性の高い超伝導の原子層膜[3,4]では、超伝導相と絶縁体相の間に異常な磁場誘起金属状態が存在することが報告されている。この超伝導-金属-絶縁体転移 (SMIT) は SIT の描像では説明できない。これまでの実験のほとんどは電気抵抗測定に限られているため、その起源は現在でも明らかになっていない。したがって、SMIT における量子ゆらぎや量子臨界性を検出する実験が必要である。

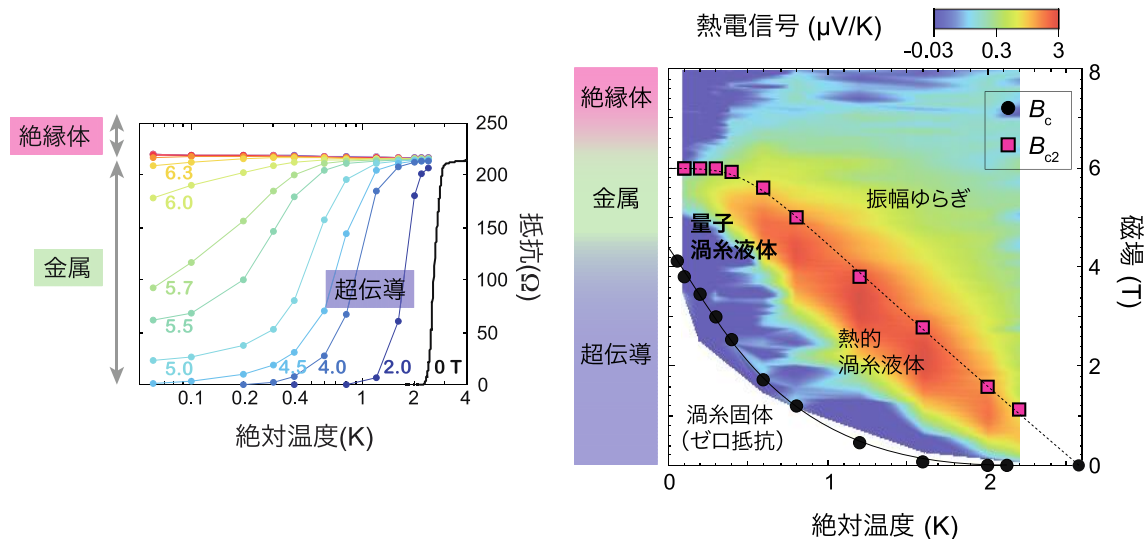


図 4. (左) 電気抵抗の温度特性. 磁場を増加させると超伝導, 金属, 絶縁体の順に絶対零度の状態が変化する. (右) ネルンスト信号の強度. 金属状態を示す磁場範囲において, 絶対零度付近まで渦糸液体状態が存在する[6,7]. <https://www.titech.ac.jp/news/2020/048488.html>

そこで本研究では, SMIT を示す厚さ 12 nm のアモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 薄膜を作製し, 0.1 K の極低温域まで熱電効果(ネルンスト効果)測定[5]を行うことにより, 超伝導秩序パラメータのゆらぎを高感度に測定した。ここで, ネルンスト効果の主な信号源は, 秩序パラメータの位相ゆらぎ(渦糸液体), 振幅ゆらぎ, および準粒子であるが, アモルファス試料では電子の平均自由行程が極端に短いために準粒子の寄与が無視できる[5]。測定の結果, 渦糸液体と振幅ゆらぎの領域を明確に検出することに成功した[6,7]。特に金属状態を示す磁場範囲においては, 極低温域においても渦糸液体が存在することが明らかになり, 量子ゆらぎによって生じた量子渦糸液体が絶対零度の金属状態の起源であることがわかった。さらに, ネルンスト信号から渦糸コアのもつ輸送エントロピーを評価した結果, 量子渦糸液体の輸送エントロピーは極低温下で非常にゆるやかに減衰すること, すなわち量子臨界性を示すことが明らかになった。この結果は, SIT の量子臨界点の広がりによって金属状態が出現していることを示唆している。

- [1] A. M. Goldman and N. Marcović, *Physics Today* 51, 39 (1998).
- [2] A. Roy, E. Shimshoni, and A. Frydman, *Phys. Rev. Lett.* 121, 047003 (2018).
- [3] A. Kapitulnik, S. A. Kivelson, and B. Spivak, *Rev. Mod. Phys.* 91, 011002 (2019).
- [4] Y. Saito, Y. Kasahara, J. Ye, Y. Iwasa, and T. Nojima, *Science* 350, 409 (2015).
- [5] K. Behnia and H. Aubin, *Rep. Prog. Phys.* 79, 046502 (2016).
- [6] K. Ienaga, T. Hayashi, Y. Tamoto, S. Kaneko, S. Okuma, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 257001 (2020).
- [7] 家永紘一郎, 大熊哲, *固体物理* 55, 723 (2020).

2. 可逆不可逆転移に及ぼす速度の効果

宮川 聖 (M2) *et al.*

ランダムに配置された多粒子系に交流せん断力を印加すると, 粒子同士は衝突を繰り返しながら, 次第に次の衝突を避ける配置へ自己組織化していく。この現象は動的秩序化, あるいはランダム組織化と呼ばれる。この現象に関連して, せん断ひずみ振幅の増大に伴い, 各周期後に全粒子が初期位置に戻る可逆状態から, 一部の粒子が戻らなくなる不可逆状態へ変化する非平衡相転移が報告された[1]。この現象は可逆不可逆転移と呼ばれ, 巨視的せん断力がかかるコロイド系ではじめて実験的に観測された[1]。我々のグループは, 巨視的な交流せん断力が印加できるコルビノディスク型超伝導体の渦糸系を用いて可逆不可逆転移の普遍性を実証した[2]。さらに最近, 局所的な交流せん断を印加した渦糸系でも可逆不可逆転移が観測されることを示し, この相転移が吸収状態転移の 2 次元 Directed Percolation (DP) 普遍クラス[3]に属する強い証拠を見出した[4]。

ところで, 駆動させる渦糸の速度を下げ実効的なピン止め力を強くすると, 局所的なせん断が起こり易くなり, 衝突が増えて可逆性が弱まると考えられる。しかし, 速度が

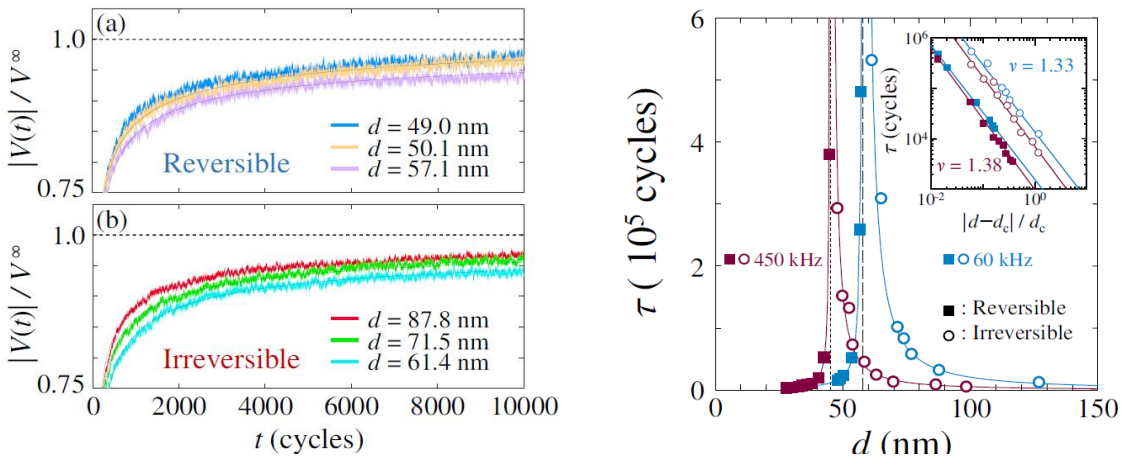


図 2(a) 可逆相と(b)不可逆相における, 60 kHz の様々な交流駆動振幅 d で測定されたランダム組織化を示す電圧の緩和波形. (c) 60 と 450 kHz の周波数の交流電流で駆動された渦糸系の緩和時間 τ の d 依存性. インセットは, べき乗の臨界発散を示す.

可逆不可逆転移にどのような影響をもたらすかは他の物理系で調べることは困難であることから, これまで速度の影響は明らかにされてこなかった. 一方, 最近の理論によると, ガラス-液体転移に代表される系の構造変化をエネルギー変化によって記述するポテンシャルエネルギー地形モデルの概念[5]が, 可逆不可逆転移に適用できる可能性が提案された. 可逆不可逆転移が, 従来の粒子の衝突による構造変化の観点からだけでなく, エネルギー変化の観点からも理解できるかどうかは興味ある問題である.

そこで本研究では, 可逆不可逆転移に及ぼす速度の影響を実験的に明らかにすることを目的とした. このため, これまで同様ランダムなピン止め中心をもつアモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 薄膜の渦糸系を準備し, 広い速度域で可逆不可逆転移の実験を行った. まず乱れた初期状態を準備し, 系に交流駆動力を印加したときの電圧 (速度) 振幅の時間発展 $|V(t)|$ を測定した. その結果, 測定した全速度域でランダム組織化を観測した. 定常状態の電圧値を V^∞ とすると, $V^\infty - |V(t)|$ で表される衝突する渦糸の数は, サイクル数を増やしていくと指数 $\alpha \approx 0.45$ のべき乗で減衰することがわかった. これは 2 次元 DP 普遍クラスの理論で予想される臨界指数 $\alpha \approx 0.451$ と一致する. さらに, 図 2 に示すように, 定常状態に至るまでの $|V(t)|$ (図 2(a)) の緩和時間 τ は, 臨界振幅 d_c の両側でべき乗の発散を示し, その臨界指数 ν も 2 次元 DP 普遍クラスの理論値である $\nu = 1.295 \pm 0.006$ に近い値を示した (図 2(b)). これらの結果から, 可逆不可逆転移における臨界現象は, 調べた速度範囲では速度によらない普遍的な現象であることがわかった[6].

一方, 低速域では可逆相と不可逆相を分ける d_c は大きくなり, 低速域で可逆相が広がる結果となった. この結果は, 低速域では実効的なピン止め力が強くなることにより衝突が増え, 可逆性が弱まるという予測と逆であった. この結果を図 3 に模式的に示す粒子の衝突モデルで考察する. 低速域 (図 3(b)) ではピン止めされた渦糸が増え, これが駆動された渦糸のガイドレールの役割を果たすことにより, 運動方向と垂直方向のずれを抑制する, すなわち可逆性が強められると解釈することができる[6].

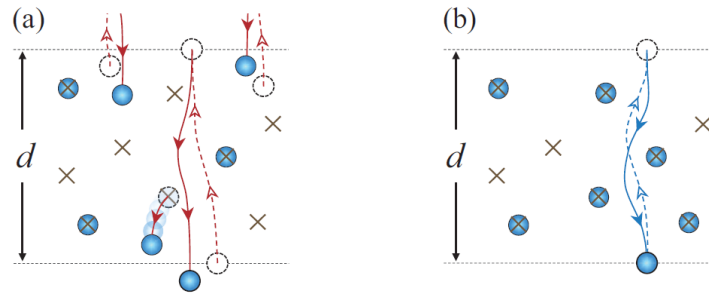


図 3(a)高速域と(b)低速域において、振幅 d で周期駆動された渦糸の、1 周期の間の運動の模式図。○が渦糸を、×がランダムなピン止め中心を表す。色をつけた破線と実線の矢印は、それぞれ 1 周期の前半と後半の渦糸の軌跡を表す[6].

つぎに、渦糸系に注入したエネルギーから、可逆相が不可逆相に変わる臨界エネルギー E_c を求めると、低速域で増加すること、すなわち可逆相が広がることがわかった。低速域でピン止めされる粒子数が多くなると動ける粒子数が減るため、系がとり得る安定な粒子配置の場合の数は限られてくる。この場合の数は、エネルギー地形でいえば極小点の数に相当する。また、粒子がピン止めされると系のエネルギーは減少する。したがって、低速域ではエネルギー地形の極小点の数が減少し、極小点の谷底が深くなることにより E_c が増大する、すなわち、不可逆状態になるためにより大きなエネルギーが必要な地形に変形する。このことにより、可逆性が強まったと解釈することができる。

以上の結果より、可逆不可逆転移に及ぼす速度の影響は、図 3 のような渦糸の衝突による配置構造の変化、およびエネルギー地形を用いたエネルギー変化の観点からも理解できることがわかった。

- [1] L. Corte *et al.*, Nat. Phys. **4** (2008) 420; D.J. Pine *et al.*, Nature **438** (2005) 997.
- [2] S. Okuma, Y. Tsugawa, A. Motohashi, Phys. Rev. B **83** (2011) 012503.
- [3] H. Hinrichsen, Adv. Phys. **49**, 815 (2000).
- [4] S. Maegochi, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, Sci. Rep. **9**, 16447 (2019).
- [5] F.H. Stillinger Science **267**, 1935 (1995)
- [6] K. Miyagawa, S. Maegochi, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, J. Phys. Conf. Ser., in press.

3. 交差駆動渦糸系における方向メモリー効果

前垣内 舜 (D1) *et al.*

自然界には様々な種類のメモリーがあるが[1], 系にどのように情報が記憶されるかは、基本的な興味ある問題である。応用面ではメモリーの保持時間と記憶される情報量が重要である。メモリー効果は非平衡状態でも現れる。例えば、外力を受ける多粒子系では、過渡的に駆動力の情報が記憶されることが知られている[2]。具体的には、超伝導渦糸系において渦糸を直流駆動させ、その過渡状態で駆動力を一度切って再度同じ駆動力を印加すると、駆動力を切る直前の運動状態を再現する[3]。これは駆動力を切った

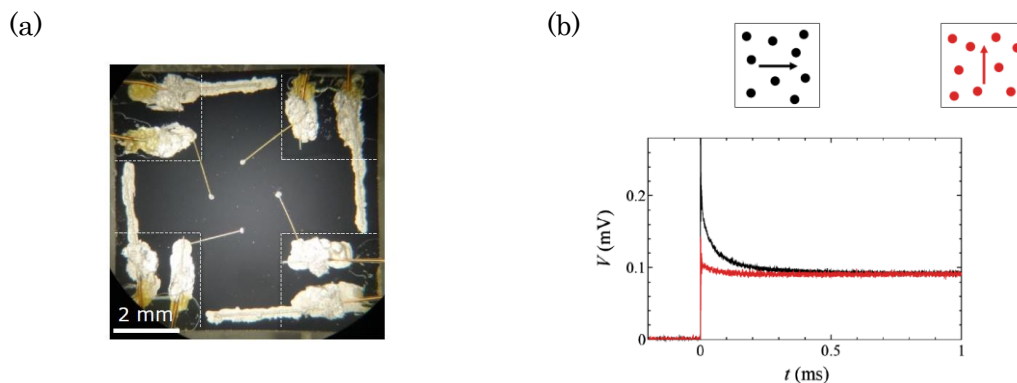


図 1(a)十字型のアモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 膜試料.中央部の 4 つの電圧端子により, x 方向と y 方向に駆動された渦糸の運動を独立に検出できる. (b) 渦糸運動によって発生する電圧の過渡波形. 黒の波形は x 方向に駆動させた場合で, 定常状態になった後に駆動力を切り, y 方向に駆動力を印加すると赤の電圧波形が得られた. わずかだが緩和が見られる. x 方向に駆動力を印加したときにはこのような緩和はまったく見られない. この結果は方向のメモリー効果を示す.

直後の渦糸配置に, 駆動力の大きさが記憶されていることを意味する. 我々のグループでは, 渦糸系の過渡状態に記憶された情報を読み出す 2 段階の輸送現象測定手法を開発した[4,5]. 大きさの記憶以外にも, グラニューラー系[6]や電荷密度波[7]の系では, 駆動力の極性のメモリー効果が知られている. それでは, 駆動力の方向は記憶されるだろうか. 最近のシミュレーションでは, ある方向に渦糸を定常状態までフローさせた後, 駆動力を一旦切り, 再度同じ大きさの駆動力を向きだけ 90° 変えて印加すると, 先ほどの駆動方向とは異なるフロー状態になることが報告されている[7]. これは渦糸の運動状態が駆動力の大きさだけでなく, 駆動力がかけられていた方向も記憶していることを示唆している.

本研究ではこのような方向のメモリー効果の存在を実験的に検証するため, 十字型のアモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 膜を作製し, 渦糸の駆動方向を 90° 変えられる交差駆動法を開発した. この試料を用いて, まず多くの渦糸がピン止めからはずれた秩序的な初期配置を準備し, x 方向に小さい駆動電流で駆動させたところ, 図 1(b)の黒い線で示す減衰型の電圧波形が得られた. この波形はランダムなピン止めに渦糸が徐々に捕まる, 運動による無秩序化を反映している. 定常状態に到達した後に駆動力を一旦切り, 今度は y 方向に先ほどと同じ大きさの駆動力を印加したときの電圧波形が赤色の線である. わずかではあるが減衰が観測された. x 方向に同じ大きさの駆動力を印加したときには, このような緩和はまったく見られない. y 方向に駆動力を印加したときに現れるわずかな緩和波形は, 強くピン止めされた渦糸が局所的壁を形成し自由な渦糸の流れをせき止める, クロッキングの描像で説明することができる. 図 1(b)の結果は, 方向のメモリー効果の存在を示している. この実験を, ピン止めの影響をほとんど無視できるくらい大きな電流で行うと, y 方向の緩和は見られなくなった. この結果は, 方向のメモリー効果はピン

止めの影響を受けた乱れたフロー状態によって生じていること、すなわち上述のクロッキング機構が重要な役割を果たしていることを裏づける。

- [1] N. C. Keim *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **91**, 035002 (2019).
- [2] S. N. Coppersmith *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3983 (1997).
- [3] Z. L. Xiao, E. Y. Andrei, M. J. Higgins, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1664 (1999).
- [4] M. Dobroka, Y. Kawamura, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, *New J. Phys.* **19**, 053023 (2017).
- [5] M. Dobroka, K. Ienaga, Y. Kawamura, S. Kaneko, S. Okuma, *New J. Phys.* **21**, 043007 (2019).
- [6] M. Toiya, J. Stambaugh, W. Losert, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 088001 (2004).
- [7] R. M. Fleming, L. F. Schneemeyer, *Phys. Rev. B* **28**, 6996 (1983).
- [8] C. Reichhardt, C. J. O. Reichhardt, *Sci. Rep.* **10**, 11625 (2020).

謝辞：本稿で紹介した研究の一部は、科研費新学術領域研究（公募研究）（代表 大熊哲，20H05266）、科研費基盤研究(B)（代表 大熊哲，17H02919）、科研費若手研究（代表 家永紘一郎，20K14413）、および第1回大隅良典基礎研究支援（代表 家永紘一郎）の支援を受けて行われた。

6. 業績リスト

田中研究室

1. S. Kimura, M. Matsumoto, and H. Tanaka: Electrically controlled directional microwave switch in the triplon Bose-Einstein condensate; *Phys. Rev. Lett.* **124** (2020) 217401 (1-5).
2. D. S. Razaq, B. Kurniawan, D. R. Munazat, K. Watanabe, and H. Tanaka: Role of Potassium Substitution in the Magnetic Properties and Magnetocaloric Effect in $\text{La}_{0.8-x}\text{K}_x\text{Ba}_{0.05}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$ ($0 \leq x \leq 0.20$); *Crystals* **10** (2020) 407 (1-19).
3. D. R. Munazat, B. Kurniawan, D. S. Razaq, K. Watanabe, and H. Tanaka: Crossover critical behavior and magnetic entropy change of $\text{La}_{0.7}\text{Ba}_{0.1}\text{Ca}_{0.1}\text{Sr}_{0.1}\text{MnO}_3$: A comparison between wet-mixing and sol-gel synthesis methods; *Physica B* **592** (2020) 412227 (1-13).
4. T. Suzuki, K. Katayama, I. Watanabe, and H. Tanaka: Spin Fluctuating Ground State in the Spin-1/2 Kagome Lattice $(\text{Rb}_{1-x}\text{Cs}_x)_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ with $x=0.53$ Observed by Muon Spin Relaxation; *J. Phys. Soc. Jpn.* **89** (2020) 074701 (1-5).
5. K. Sakurai, S. Kimura, S. Awaji, M. Matsumoto and H. Tanaka: Spin-driven ferroelectricity in the quantum magnet under high pressure; *Phys. Rev. B* **102** (2020) 064104 (1-6).
6. R. Nomura and Y. Okuda: Colloquium: Quantum crystallizations of ^4He in superfluid far from equilibrium; *Rev. Mod. Phys.* **92** (2020) 041003 (1-23).
7. M. Yamashita, J. Gouchi, Y. Uwatoko, N. Kurita and H. Tanaka: Sample dependence of the half-integer quantized thermal Hall effect in a Kitaev candidate $\alpha\text{-RuCl}_3$; *Phys. Rev. B* **102** (2020) 220404(R) (1-5).
8. X. G. Zhou, Yuan Yao, Y. H. Matsuda, A. Ikeda, A. Matsuo, K. Kindo and H. Tanaka: Particle-Hole Symmetry Breaking in a Spin Dimer System TlCuCl_3 Observed at 100 T.; *Phys. Rev. Lett.* **125** (2020) 267207 (1-6).
9. 野村竜司, 奥田雄一: 超流動液体から生じる ^4He 量子結晶の平衡形と非平衡形; *日本結晶成長学会誌* **47** (2020) 4-3 (1-10).
10. 栗田伸之, 田中秀数: ほぼ完全にフラストレートしたスピンドイマー量子磁性体の局在励起; *波紋* **30** (2020) 130-135.
11. K. Watanabe, N. Kurita, H. Tanaka, H. Sugiyama, H. Uekusa, I. F. Diaz-Ortega, and H. Nojiri: Coupled spin-1/2 antiferromagnetic chain $\text{Cs}_2\text{LiRuCl}_6$ with partially disordered crystal lattice; *Phys. Rev. B* **103** (2021) 064419 (1-9).

平原研究室

論文：

T. Hirahara, M. M. Otrokov, T. T. Sasaki, K. Sumida, Y. Tomohiro, S. Kusaka, Y. Okuyama, S. Ichinokura, M. Kobayashi, Y. Takeda, K. Amemiya, T. Shirasawa, S. Ideta, K. Miyamoto, K. Tanaka, S. Kuroda, T. Okuda, K. Hono, S. V. Ereemeev, and E. V. Chulkov

"Fabrication of a novel magnetic topological heterostructure and temperature evolution of its massive Dirac cone",

[Nature Communications 11, 4821 \(2020\).](#)

N. Fukui, R. Hobara, A. Takayama, R. Akiyama, T. Hirahara, and S. Hasegawa

"Scattering of topological surface-state carriers at steps on surfaces",

[Physical Review B 102, 115418 \(2020\).](#)

A. K. Pedersen, S. Ichinokura, T. Tanaka, R. Shimizu, T. Hitosugi, and T. Hirahara

"Interfacial Superconductivity in FeSe Ultrathin Films on SrTiO₃ Probed by In Situ Independently Driven Four-Point-Probe Measurements",

[Physical Review Letters 124, 227002 \(2020\).](#)

T. Tanaka, K. Akiyama, S. Ichinokura, R. Shimizu, T. Hitosugi, and T. Hirahara

"Superconducting dome revealed by surface structure dependence in single unit cell FeSe on SrTiO₃(001)",

[Physical Review B 101, 205421 \(2020\).](#)

招待講演：

Toru Hirahara

"Superconductivity of monolayer FeSe films on SrTiO₃ substrates with controlled surface superstructures",

28th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM28)

2020年12月（オンライン）

平原 徹

"界面を制御した単層 FeSe/SrTiO₃ の超伝導研究"

基研研究会「高温超伝導・非従来型超伝導研究の最前線：多様性と普遍性」

2020年10月（京大基研、オンライン）

平原 徹

"界面を制御した単層 FeSe/SrTiO₃ の超伝導研究"

物性研究所ワークショップ「ナノスケール物性科学の最先端と新展開」

2020年7月 (オンライン)

一般講演

国内学会：

橋爪瑞葵, 一ノ倉聖, 清水亮太, 一杉太郎, 平原徹

"Li インターカレートした SiC 上のグラフェンの層数制御によるリフシット転移の観測"

日本物理学会 第 76 会年次大会 2021/3/12 (オンライン)

一ノ倉聖, Hemmi Adrian, 清水亮太, 一杉太郎, Greber Thomas, 平原徹

"アルカリ金属蒸着による単原子層 h-BN のエネルギーバンドシフト"

日本物理学会 第 76 会年次大会 2021/3/12 (オンライン)

日下翔太郎, 佐々木泰祐, 角田一樹, 一ノ倉聖, 出田真一郎, 田中清尚, 宝野和博, ○平原徹

"Bi と Te からなるトポロジカル絶縁体超格子の作製とその電子状態"

日本物理学会 第 76 会年次大会 2021/3/12 (オンライン)

福嶋隆司朗, 角田一樹, 竹田幸治, 一ノ倉聖, 平原徹

"磁性トポロジカル絶縁体サンドウィッチ構造の電子状態と磁化特性"

日本物理学会 第 76 会年次大会 2021/3/12 (オンライン)

平原 徹

"界面を制御した単層 FeSe/SrTiO₃ の高温超伝導特性解明"

新学術機能コア 第 5 回遠隔連携会議 2020年11月 (オンライン)

橋爪瑞葵, 一ノ倉聖, 豊田雅之, 日下翔太郎, 出田真一郎, 田中清尚, 清水亮太, 一杉太郎,
斎藤晋, 平原徹

"Li-インターカレーションによる 単層グラフェン/SiC(0001)の二層化とフラットバンドの占有"

UVSOR シンポジウム 2020 2020年10月 (オンライン)

高城拓也, 秋山了太, I. A. Kibirev, A. V. Matetskiy, 遠山晴子, 中西亮介, 樋渡功太, 平原徹,
深澤拓朗, A. V. Zotov, A. A. Saranin, 長谷川修司

"強磁性トポロジカル絶縁体サンドイッチ構造 $\text{Mn}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_4/(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3/ \text{Mn}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_4/\text{Si}(111)$ のフェルミ準位制御による電気伝導特性変調"

日本物理学会 2020 年秋季大会 2020/9/9 (オンライン)

一ノ倉聖, Pedersen Asger, 田中友晃, 清水亮太, 一杉太郎, 平原徹

"超高真空中での独立駆動 4 探針電気伝導測定法による FeSe 超薄膜/SrTiO₃ の界面超伝導の検出"

日本物理学会 2020 年秋季大会 2020/9/10 (オンライン)

深澤拓朗, 日下翔太郎, 角田一樹, 橋爪瑞葵, 一ノ倉聖, 竹田幸治, 出田真一郎, 田中清尚, 清水亮太, 一杉太郎, ○平原徹

"磁性トポロジカル絶縁体ヘテロ構造 $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/\text{Bi}_2\text{Te}_3$ の構造、電子状態と磁性"

日本物理学会 2020 年秋季大会 2020/9/11 (オンライン)

田中友晃, 一ノ倉聖, 清水亮太, 一杉太郎, 平原徹

"SrTiO₃(001)- $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ 上に作成した単層 FeSe の超伝導特性"

日本物理学会 2020 年秋季大会 2020/9/11 (オンライン)

橋爪瑞葵, 一ノ倉聖, 豊田雅之, 日下翔太郎, 出田真一郎, 田中清尚, 清水亮太, 一杉太郎, 斎藤晋, 平原徹

"Li-インターカレーションによる単層グラフェン/SiC(0001)の二層化とフラットバンドの占有"

日本物理学会 2020 年秋季大会 2020/9/11 (オンライン)

西野研究室

(<http://www.chemistry.titech.ac.jp/~nishino/>)

論文リスト

1. T. Harashima, Y. Hasegawa, S. Kaneko, Y. Jono, S. Fujii, M. Kiguchi and T. Nishino "Elementary Processes of DNA Surface Hybridization Resolved by Single-molecule Kinetics: Implication for Macroscopic Device Performance" *Chem. Sci.* in press, 2020.
2. Y. Isshiki, S. Fujii, T. Nishino, M. Kiguchi, "Selective Formation of Molecular Junctions with High and Low Conductance States by Tuning the Velocity of Electrode Displacement" *Phys. Chem. Chem. Phys.* 22 4544–4548 2020.
3. S. Fujii, M. Iwane, S. Furukawa, T. Tada, T. Nishino, M. Saito, M. Kiguchi, "Hybrid Molecular Junctions Using Au–S and Au– π Bindings" *J. Phys. Chem. C* 124 9261–9268 2020.
4. S. Kobayashi, S. Kaneko, M. Kiguchi, K. Tsukagoshi, T. Nishino "Tolerance to Stretching in Thiol-Terminated Single-Molecule Junctions Characterized by Surface-Enhanced Raman Scattering" *J. Phys. Chem. Lett.* 11 6712–6717 2020.
5. A. Aiba, S. Kaneko, T. Tsuruoka, K. Terabe, M. Kiguchi, T. Nishino "Effects of Water Adsorption on Conductive Filaments of a Ta₂O₅ Atomic Switch Investigated by Nondestructive Electrical Measurements" *Appl. Phys. Lett.* 117 233104 2020.

<論文リスト>

1. Fujiwara, K., Fukada, Y., Okuda, Y. et al. Direct evidence of electronic ferroelectricity in YbFe_2O_4 using neutron diffraction and nonlinear spectroscopy. *Sci Rep* 11, 4277 (2021). DOI:10.1038/s41598-021-83655-6
2. R. Fukaya, N. Yamaya, T. Ishikawa, S. Koshihara, Y. Okimoto, K. Onda, A. Isayama, T. Sasagawa, K. Horigane, "Picosecond dynamics in layered cobalt perovskites studied by time-resolved Raman spectroscopy", *Comptes Rendus Physique*, p.8 (2021), DOI:10.5802/crphys.35
3. M.Hada, K.Makino, H.Inoue, T.Hasegawa, H.Masuda, H.Suzuki, K.Shirasu, T.Nakagawa, T.Seki, J.Matsuo, T.Nishikawa, Y.Yamashita, Shin-ya Koshihara, V.Stolojan, S. Ravi, P.Silva, J.Fujita, Y.Hayashi, S.Maeda, M.Hase, "Phonon transport probed at carbon nanotube yarn/sheet boundaries by ultrafast structural dynamics", *Carbon*, **170**, 165-173 (2020), DOI:10.1016/j.carbon.2020.08.026
4. M.Fukuda, T.Nishikubo, Z.Pan, Y.Sakai, M.H.Zhang, S.Kawaguchi, H. Yu, Y.Okimoto, S.Koshihara, M. Itoh, J.Rödel, and M.Azuma, "Enhanced Spontaneous Polarization by V^{4+} Substitution in a Lead-Free Perovskite $\text{CaMnTi}_2\text{O}_6$ ", *Inorg. Chem.*, **59**, 11749-11756 (2020), DOI:10.1021/acs.inorgchem.0c01697
5. H. Yu, K. Takubo, T. Ishikawa, S. Koshihara, M. Hada, T. Asaka, K. Ozawa, K. Shigematsu, M. Azuma, Y. Okimoto, "Ultrafast Nonlinear Spectroscopy in (111) Oriented Bismuth Ferrite Oxide", *JPSJ*, **89**, 063401 (2020), DOI:10.7566/JPSJ.89.063401

<国際会議 >

1. "Photoinduced charge transfer dynamics in a chain coordination-polymer neutral-ionic phase transition system", T. Ishikawa, F. Sano, T. Goto, Y. Okimoto, S. Koshihara, Y. Takahashi, Y. Du, W. Kosaka, and H. Miyasaka, The 1st Asian Conference on Molecular Magnetism (ACMM 2020), Online, Mar. 7-10, 2021 (Poster)

<国内会議>

1. 「有機強誘電体 Hdppz-Hca のプロトン動的再配列による超高速強誘電性制御」、松島遼、石川忠彦、腰原伸也、夏沛宇、板谷治郎、堀内佐智雄、沖本洋一、第 76 回日本物理学会年次大会、オンラインで開催、2021 年 3 月 12-15 日(口頭発表)
2. 「第二次高調波発生から見た LuFe_2O_4 結晶の電子強誘電性」、于洪武、森田敦也、石川忠彦、腰原伸也、沖本洋一、深田幸正、藤原孝将、池田直、岸田晶穂、伊藤弘毅、岩井伸一郎、第 76 回日本物理学会年次大会、オンラインで開催、2021 年 3 月 12-15 日 (口頭発表)
3. 「水素結合型有機反強誘電体における非線形光学分光」、周清瑶、松島遼、石川忠彦、腰原伸也、堀内佐智雄、沖本洋一、第 76 回日本物理学会年次大会、オンラインで開催、2021 年 3 月 12-15 日 (ポスター)
4. 「スピנקロスオーバー相転移を示す複合磁性材料における、励起波長依存性をもった 2 つの光誘起状態」、中野真之介、石川忠彦、田久保耕、沖本洋一、腰原伸也、東亮介、宮脇敦

- 大, 高橋一志, 佐藤文菜, 一柳光平, 深谷亮、第 76 回日本物理学会年次大会、オンラインで開催、2021 年 3 月 12-15 日 (口頭発表)
5. 「分子内振動スペクトルから見た $(\text{NPr}_4)_2[\text{Fe}_2(\text{Cl}_2\text{An})_3]$ の電荷移動相転移」、加藤望根, 石川忠彦, 田久保耕, 沖本洋一, 腰原伸也, 江口尚輝, Jian Chen, 関根良博, 宮坂等、第 76 回日本物理学会年次大会、オンラインで開催、2021 年 3 月 12-15 日 (口頭発表)
 6. 「新同期方式によるフェムト秒電子線回折装置の開発」、Jin Sichen, 田久保耕, S. Banu, 金子水咲, 石川忠彦, 沖本洋一, 腰原伸也, 羽田真毅, 林靖彦、第 76 回日本物理学会年次大会、オンラインで開催、2021 年 3 月 12-15 日 (ポスター)
 7. 「水素結合型有機反強誘電体における非線形光学分光」、周清瑶, 松島遼, 石川忠彦, 腰原伸也, 堀内佐智雄, 沖本洋一、第 31 回光物性研究会、オンラインで開催、2020 年 12 月 12 日 (ポスター)
 8. 「有機強誘電体 Hdppz-Hca における中赤外域振動電場を用いた強誘電ダイナミクス制御」、松島遼, 石川忠彦, 腰原伸也, 夏沛宇, 板谷治郎, 堀内佐智雄, 沖本洋一、第 31 回光物性研究会、オンラインで開催、2020 年 12 月 11-12 日 (口頭発表)
 9. 「中性イオン性相転移を示す新規一次元鎖状高分子単結晶における光誘起電荷移動ダイナミクス」、石川忠彦, 佐野史弥, 田久保耕, 沖本洋一, 腰原伸也, 杜毅軟, 高橋優介, 高坂亘, 宮坂等、2020 年日本物理学会秋季大会 (物性) オンラインで開催、2020 年 9 月 8-11 日 (口頭発表)
 10. 「光誘起構造ダイナミクス測定のためのテーブルトップフェムト秒時間分解電子線回折装置の開発」、田久保耕, Jin Sichen, 羽田真毅, 東正樹, 林靖彦, 桑原真人, 宮坂等, 石原純夫, 石川忠彦, 沖本洋一, 腰原伸也、2020 年日本物理学会秋季大会 (物性)、オンラインで開催、2020 年 9 月 8-11 日 (ポスター)

森研究室

1. “Low-temperature properties of thermoelectric generators using molecular conductors” Y. Kiyota, T. Kawamoto, and T. Mori, *Synth. Met.* **259**, 116217-1 – 116217-7 (2020).
2. “Thermoelectric power of the multi-orbital dimer Mott system, β -(CH₃)₄N[Pd(dmit)₂]₂” Y. Kiyota, T. Kawamoto, R. Kato, and T. Mori, *J. Phys. Soc. Jpn.* **89**, 034701-1 – 034701-5 (2020).
3. “Bulky phenylalkyl substitutions to bithienoisatins and thienoisindigos” D. Yoo, A. Kohara, M. Ashizawa, T. Kawamoto, H. Masunaga, N. Ohta, H. Matsumoto, and T. Mori, *Cryst. Growth Design* **20**, 3293 – 3303 (2020).
4. “Ambipolar organic field-effect transistors based on N-unsubstituted thienoisindigo derivatives” D. Yoo, T. Hasegawa, A. Kohara, H. Sugiyama, M. Ashizawa, T. Kawamoto, H. Masunaga, T. Hikima, N. Ohta, H. Uekusa, H. Matsumoto, and T. Mori, *Dyes Pigments* **180**, 108418-1 – 108418-12 (2020).
5. “Ambipolar transistor properties of N₂S₂-type metal complexes” Y. Kato, K. Iijima, D. Yoo, T. Kawamoto, and T. Mori, *Chem. Lett.* **49**, 870 – 874 (2020).
6. “Transistor characteristics of charge-transfer complexes observed across a neutral-ionic transition” T. Uekusa, R. Sato, D. Yoo, T. Kawamoto, and T. Mori, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12**, 24174 – 24183 (2020).
7. “A large variety of crystal structures and conducting properties in dimethylbenzoimidazolium (DMBI) salts of tetracyanoquinodimethanes” K. Suzuki, D. Yoo, Y. Kiyota, T. Uekusa, T. Kawamoto, and T. Mori, *Cryst. Growth Design* **20**, 5940 – 5946 (2020).
8. “Transistor properties of salen-type metal complexes” K. Koyama, K. Iijima, D. Yoo, and T. Mori, *RSC Adv.* **10**, 29603 – 29609 (2020).
9. “Structures and transistor properties of extended and unsymmetrical birhodanines” Y. Sumimoto, K. Iijima, D. Yoo, T. Kawamoto, Y. Le Gal, D. Lorcy, and T. Mori, *CrystEngComm* **22**, 6920 – 6926 (2020).
10. “Temperature dependence of field-effect thermoelectric power in rubrene crystals” Y. Kiyota, T. Kawamoto, and T. Mori, *J. Phys. Chem. C* **124**, 22399 – 22405 (2020).
11. “A cyano-rich small molecule dopant for organic thermoelectrics” K.-H. Tu, Y. Wang, Y. Kiyota, T. Iwahashi, Y. Ouchi, T. Mori, and T. Michinobu, *Org. Electron.* **87**, 105978-1 – 105978-7 (2020).
12. “Diketopyrrolopyrrole-thiophene-methoxythiophene based random copolymers for organic field effect transistor applications” S. Otep, Y.-C. Lin, H. Matsumoto, T. Mori, K.-H. Wei, and T. Michinobu, *Electronics* **9**, 1604-1 – 1604-13 (2020).

大友研究室

[2020 年度対外研究報告]

● 論文

1. Ryo Wakabayashi, Kohei Yoshimatsu, Mai Hattori, Jung-Soo Lee, Osami Sakata, and Akira Ohtomo, "Epitaxial stabilization of complete solid-solution β -(Al_xGa_{1-x})₂O₃ (100) films by pulsed-laser deposition", *Cryst. Growth Des.*, in press.
2. Takuto Soma, Tomohiro Kobayashi, Kohei Yoshimatsu, and Akira Ohtomo, "Superconducting dome underlying bipolaronic insulating state in charge-doped Ti₄O₇ epitaxial films", *J. Phys. Soc. Jpn.* **90**, 023705 (2021).
3. Takuto Soma, Kohei Yoshimatsu, and Akira Ohtomo, "p-Type transparent superconductivity in a layered oxide", *Sci. Adv.* **6**, eabb8570 (2020).

● 国際会議

なし

● 国内会議

1. 佐藤 大知, 横山 竜, 相馬 拓人, 大友 明, "Ni-N 結合の実現に向けた CrN/NiO 超格子構造の作製", 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, オンライン, 2021.3.16–3.19.
2. 張 書馨, 相馬 拓人, 大友 明, "Investigation of impact of orientation on electronic properties in epitaxially grown MoO₂ films", 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, オンライン, 2021.3.16–3.19.
3. 矢島 達也, 相馬 拓人, 大友 明, "層状岩塩型 LiNiO₂ 薄膜のエピタキシャル成長", 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, オンライン, 2021.3.16–3.19.
4. 張 楠, 斉藤 拓海, 亀井 海聖, 相馬 拓人, 大友 明, "光支援容量-電圧測定による γ -Al₂O₃/ β -Ga₂O₃ 界面の評価", 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, オンライン, 2021.3.16–3.19.
5. 斉藤 拓海, 井原 佑太, 相馬 拓人, 加渡 幹尚, 大友 明, "パルスレーザ堆積法による窒素ドーピング Ga₂(O_{1-x}S_x)₃ 薄膜の成長", 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, オンライン, 2021.3.16–3.19.
6. 矢島 達也, 相馬 拓人, 大友 明, "スピネル・層状岩塩型構造バナジウム酸リチウムのエピタキシャル成長と電気化学的イオン脱挿入", 第 46 回固体イオニクス討論会, オンライン, 2020.12.8–12.9.
7. 矢島 達也, 相馬 拓人, 大友 明, "電気化学反応を用いたフィリング制御による「電子の重さ」の変調", 第 10 回 CSJ 化学フェスタ, オンライン, 2020.10.20–10.22.
8. 張 樹桐, 武内 優, 相馬 拓人, 大友 明, "巨大交換バイアスの実現に向けた La₂MnCoO₆ 薄膜の B サイト秩序度制御による磁気特性の変調", 第 10 回 CSJ 化学フェスタ, オンライン, 2020.10.20–10.22.

浅田研究室

査読付き論文

1. K. Kobayashi, S. Suzuki, F. Han, H. Tanaka, H. Fujikata, and M. Asada, "Analysis of a high-power resonant-tunneling-diode terahertz oscillator integrated with a rectangular cavity resonator" *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 58, no. 5, pp. 050907-1-050907-5, May 2020.
2. A. Dobroiu, R. Wakasugi, Y. Shirakawa, S. Suzuki, and M. Asada, "Amplitude-modulated continuous-wave radar in the terahertz range using lock-in phase measurement" *Meas. Sci. Technol.*, vol. 31, pp. 105001-1-105001-9, May 2020.
3. Y. Takida, S. Suzuki, M. Asada, and H. Minamide, "Sensitive terahertz-wave detector responses originated by negative differential conductance of resonant-tunneling-diode oscillator" *Appl. Phys. Lett.*, vol. 117, no. 2, pp. 021107-1-021107-5, Jul. 2020.
4. T. Van Mai, Y. Suzuki, X. Yu, S. Suzuki, and M. Asada, "Structure-Simplified Resonant-Tunneling-Diode Terahertz Oscillator Without Metal-Insulator-Metal Capacitors" *J. Infrared Milli. Terahz. Waves*, vol. 41, no. 12, pp. 1498-1507, Dec. 2020.
5. F. Han, K. Kobayashi, S. Suzuki, H. Tanaka, H. Fujikata, and M. Asada, "Impedance matching in high-power resonant-tunneling-diode terahertz oscillators integrated with rectangular-cavity resonator," *IEICE Trans. Electron.*, 2020ECS6020, 2021. (10.1587/transele.2020ECS6020)
6. M. Asada and S. Suzuki, "Terahertz Emitter Using Resonant-Tunneling Diode and Applications," *Sensors*, vol. 21, no. 4, pp. 1384-1-1384-19, 2021.
7. Y. Tokizane, H. Ejiri, T. Minamikawa, S. Suzuki, M. Asada, and T. Yasui, "Hybrid optical imaging with near-infrared, mid-infrared, and terahertz wavelengths for nondestructive inspection," *Appl. Opt.*, vol. 60, no. 10, pp. B100-B105, 2021.

小寺研究室

(1) 論文発表

原著論文

1. R. Mizokuchi, S. Bugu, M. Hirayama, J. Yoneda, T. Kodera, "Radio-frequency single electron transistors in physically defined silicon quantum dots with a sensitive phase response" accepted to Scientific reports (2021)
2. S. Bugu, S. Nishiyama, K. Kato, Y. Liu, T. Mori, T. Kodera, "RF reflectometry for readout of charge transition in a physically defined p-channel MOS silicon quantum dot." accepted to Japanese Journal of Applied Physics (2021).
3. S. Bugu, F. Ozaydin and T. Kodera, "Surpassing the classical limit in magic square game with distant quantum dots coupled to optical cavities" Sci Rep, **10**, 22202 (2020), 2020-12-17, doi:10.1038/s41598-020-79295-x
4. R. Mizokuchi, M. Tadokoro and T. Kodera, "Detection of tunneling events in physically defined silicon quantum dot using single-shot measurements improved by numerical treatments" Appl. Phys. Express, **13**, 121004 (2020), 2020-11-23, doi:10.35848/1882-0786/abc923
5. N. Shimatani, Y. Yamaoka, R. Ishihara, A. Andreev, D. A. Williams, S. Oda, and T. Kodera, "Temperature dependence of hole transport properties through physically defined silicon quantum dots" (Editor's pick) Appl. Phys. Lett. **117**, 094001 (2020), 2020-8-31, doi:10.1063/5.0010981
6. S. Hiraoka, K. Horibe, R. Ishihara, S. Oda and T. Kodera, "Physically defined silicon triple quantum dots charged with few electrons in metal-oxide-semiconductor structures" Appl. Phys. Lett. **117**, 074001 (2020), 2020-8-19, doi: 10.1063/5.0010906
7. N. Lee, R. Tsuchiya, G. Shinkai, Y. Kanno, T. Mine, T. Takahama, R. Mizokuchi, T. Kodera, D. Hisamoto, and H. Mizuno, "Enhancing electrostatic coupling in silicon quantum dot array by dual gate oxide thickness for large-scale integration" Appl. Phys. Lett. **116**, 162106 (2020),2020-4-23, doi: 10.1063/1.5141522

(2) 口頭発表

① 招待講演

1. 小寺 哲夫、「半導体量子ビットの研究動向と展望」18p-Z07-6、第68回応用物理学会春季学術講演会、シンポジウム「スピンを利用した量子技術の最前線 - 量子デバイス開発から新材料探索まで -」、オンライン開催、2021年3月18日
2. 小寺 哲夫、「IV族半導体量子ビット研究の動向と展望」科研費 ゲルマニウム系量子スピン研究会、オンライン参加、2021年3月10日
3. 小寺哲夫、「シリコンスピン量子ビットの集積に向けた研究」第25回半導体におけるスピン工学の基礎と応用、オンライン開催、2020年11月17日-19日
4. 小寺哲夫、「シリコン量子コンピュータデバイス技術」講演3、第224回応用物理学会

シリコンテクノロジー分科会 研究集会 「量子コンピュータにおける半導体・デバイステクノロジー」 オンライン開催、2020年11月13日

5. T. Kodera, (Invited) “Silicon quantum dot devices for spin-based quantum computing” IEEE Silicon Nanoelectronics Workshop 2020 (SNW 2020), 5.1, (Virtual), June 13-14 (2020)

② 国際学会

1. S. Bugu, S. Nishiyama, K. Kato, Y. Liu, T. Mori, T. Kodera, ”Readout of Charge States in a Physically Defined PMOS Silicon Quantum Dot via RF Reflectometry”, 2020 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2020), I-6-02, ALL-VIRTUAL Conference, September 27-30(2020)
2. T. Kodera (Invited), “Silicon quantum dot devices for spin-based quantum computing”, IEEE Silicon Nanoelectronics Workshop 2020 (SNW 2020), 5.1, (Virtual), June 13-14 (2020)

③ 国内学会

1. 太田 俊輔、Junliangn Wang、高田 真太郎、中村 秀司、岡崎 雄馬、Christopher Bauerle、金子 晋久、小寺 哲夫、「チャープ IDT を用いたデルタパルス型表面弾性波の生成」16a-Z26-10、第68回応用物理学会春季学術講演会、オンライン開催、2021年3月16日
2. 泊 開人、西山 伸平、田所 雅大、小寺 哲夫、「静電的なクロストークを低減できる物理形成シリコン量子ドットのゲート構造提案」16a-Z26-9、第68回応用物理学会春季学術講演会、オンライン開催、2021年3月16日
3. 田所 雅大、鈴木 優作、西山 伸平、加藤 公彦、柳 永勲、村上 重則、森 貴洋、溝口 来成、米田 淳、小寺 哲夫、「物理的に形成された p 型シリコン二重量子ドットにおける正孔スピン共鳴」16a-Z26-8、第68回応用物理学会春季学術講演会、オンライン開催、2021年3月16日
4. Hiroki Takahashi、Sinan Bugu、Tetsuo Kodera、「Controlling impedance matching in RF reflectometry measurement of quantum dot via FPGA」16a-Z26-6、第68回応用物理学会春季学術講演会、オンライン開催、2021年3月16日
5. 松岡 竜太郎、「スピン量子ビット集積化に向けたゲルマニウム量子ドットの作製と評価」科研費 ゲルマニウム系量子スピン研究会、オンライン参加、2021年3月10日
6. 溝口 来成「Ge/SiGe ヘテロ構造中での低次元正孔輸送についての研究」科研費 ゲルマニウム系量子スピン研究会、オンライン参加、2021年3月10日
7. 小寺 哲夫、「シリコンスピン量子ビットの集積に向けた研究」第25回半導体におけるスピン工学の基礎と応用、オンライン開催、2020年11月17日-19日

8. 小寺 哲夫、「シリコン量子コンピュータデバイス技術」講演3、第224回応用物理学会シリコンテクノロジー分科会 研究集会 「量子コンピュータにおける半導体・デバイステクノロジー」オンライン開催、2020年11月13日
9. 溝口 来成、西山 伸平、加藤 公彦、柳 永勲、森 貴洋、小寺 哲夫、「トンネル結合した電荷センサを持つ物理形成シリコン量子ドットの特性評価」11p-Z09-8、第81回応用物理学会秋季学術講演会、オンライン開催、2020年9月11日
10. 平山 勝登、溝口 来成、田所 雅大、小寺 哲夫、「単一データライン上の量子ドット状態読み出しに向けた信号多重化についての研究」11p-Z09-9、第81回応用物理学会秋季学術講演会、オンライン開催、2020年9月11日
11. 太田 俊輔、濱田 龍之介、門脇 正史、西森 秀稔、小寺 哲夫、「量子アニーラ(D-wave)を用いた多変量標準正規分布に従う乱数生成に向けた検証」、8p-Z27-4、第81回応用物理学会秋季学術講演会、オンライン開催、2020年9月8日
12. 田所 雅大、中島 峻、小林 崇、武田 健太、野入 亮人、泊 開人、樽茶 清悟、小寺 哲夫、「大規模集積化に向けたシリコン量子ビットを用いた NISQ デバイス」、11p-Z09-10、第81回応用物理学会秋季学術講演会、オンライン開催、2020年9月11日

藤澤研究室

理学院物理学系, 極低温研究支援センター 藤澤 利正

<http://fujisawa.phys.titech.ac.jp/>

【論文】

- [1] Chaojing Lin, Masayuki Hashisaka, Takafumi Akiho, Koji Muraki, Toshimasa Fujisawa, "Quantized charge fractionalization at quantum Hall Y junctions in the disorder-dominated regime", Nature Communications 12, 131 (2021).
- [2] Tokuro Hata, Tomoki Uchino, Takafumi Akiho, Koji Muraki and Toshimasa Fujisawa, "Sensitive current measurement on a quantum antidot with a Corbino-type electrode", Japan. J. Appl. Phys. 59, SGGI03 (2020).
- [3] Masayuki Hashisaka, Koji Muraki, and Toshimasa Fujisawa, "Two-step breakdown of a local $\nu=1$ quantum Hall state", Phys. Rev. B 101, 041303(R) (2020).

【国際会議発表】

- [1] Chaojing Lin, "Quantized charge fractionalization at quantum Hall Y junctions in the disorder dominated regime", 10th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information (SpinCamp), online (Dec. 17-18, 2020).
- [2] Taichi Hirasawa, "Non-equilibrium excitation of quantum-Hall edge channels by injecting hot electrons", 10th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information (SpinCamp), online (Dec. 17-18, 2020).
- [3] Ryota Konuma, "Tunable thermal transport through quantum Hall edge channels with a quantum point contact", 10th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information (SpinCamp), online (Dec. 17-18, 2020).

【国内学会】

- [1] 小沼亮太, Chaojing Lin, 秦徳郎, 平澤太一, 秋保貴史, 村木康二, 藤澤利正, 「藤澤利正量子ポイント接合を用いた量子ホールエッジチャンネルの熱輸送制御」, 10aD1-7 日本物理学会 2020 年秋季大会 (online) (2020/9/8-11).
- [2] Chaojing Lin, 橋坂昌幸, 秋保貴史, 村木康二, 藤澤利正, 「整数/分数量子ホール Y 接合における電荷波束の分数化現象」, 10aD1-8 日本物理学会 2020 年秋季大会 (online) (2020/9/8-11).
- [3] 平澤太一, Chaojing Lin, 秦徳郎, 小沼亮太, 秋保貴史, 村木康二, 藤澤利正, 「占有率 2 の量子ホールエッジチャンネルにおけるエネルギー緩和測定」, PSD-2 日本物理学会 2020 年秋季大会 (online) (2020/9/8-11).
- [4] Chaojing Lin, 橋坂昌幸, 秋保貴史, 村木康二, 藤澤利正, 「整数/分数量子ホール領域境界に形成された単一分数チャンネルにおける電荷波束の伝搬特性」, 17aA43-6, 日本物理学会 第 75 回年次大会(2020 年), (COVID-19 対応のため概要発表のみ)

[5] 秋山竣哉, 秦徳郎, Chaojing Lin, 秋保貴史, 村木康二, 藤澤利正、「量子ホールエッジチャネルを用いた熱電集積回路における総合熱効率」、16pPSB-152, 日本物理学会 第 75 回年次大会(2020 年), (COVID-19 対応のため概要発表のみ)

大熊研究室

論文

1. K. Ienaga, T. Hayashi, Y. Tamoto, S. Kaneko, and S. Okuma
Quantum criticality inside the anomalous metallic state of a disordered superconducting thin film
Phys. Rev. Lett. **125** (2020) 257001(1-5).
2. 家永紘一郎, 大熊 哲
熱電効果で探る 2 次元超伝導体の量子臨界現象と渦糸状態
固体物理 **55** No.12 (2020) 723-735
3. K. Miyagawa, S. Maegochi, K. Ienaga, S. Kaneko and S. Okuma
Effects of the velocity on the reversible-irreversible transition in a periodically sheared vortex system
J. Phys.: Conf. Ser. (2021) (1-6), in press.

口頭発表

1. 前垣内舜, 三宅健太郎, 名取透吾, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲:
交差駆動渦糸系における方向メモリー効果:
日本物理学会 2021 年年次大会 2021 年 3 月 12 日-15 日, 東京大学 Zoom 開催
2. 上野龍司, 家永紘一郎, 金子真一, 笠原成, 松田祐司 A, 大熊哲:
FeSe 単結晶の渦糸フローホール効果と渦糸相図:
日本物理学会 2021 年年次大会 2021 年 3 月 12 日-15 日, 東京大学 Zoom 開催
3. 家永紘一郎, 田本豊嘉, 依田正弘, 金子真一, 大熊哲:
乱れた 2 次元超伝導体の量子ゆらぎに対する膜厚減少の効果:
日本物理学会 2021 年年次大会 2021 年 3 月 12 日-15 日, 東京大学 Zoom 開催
4. 宮川聖, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲:
超伝導渦糸系における可逆不可逆転移とポテンシャルエネルギー地形:
日本物理学会 2020 年秋季大会 2020 年 9 月 8 日-11 日, 熊本大学 Zoom 開催
5. 前垣内舜, 宮川聖, 家永紘一郎, 金子真一, 小林天, 坂田英明, 大熊哲:
Se ドープした ZrTe_3 の渦糸状態:
日本物理学会 2020 年秋季大会 2020 年 9 月 8 日-11 日, 熊本大学 Zoom 開催
6. 家永紘一郎, 林太弘, 田本豊嘉, 金子真一, 大熊哲:
熱電応答で探るアモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 超伝導薄膜の量子臨界性:
日本物理学会 2020 年秋季大会 2020 年 9 月 8 日-11 日, 熊本大学 Zoom 開催
7. 田本豊嘉, 家永紘一郎, 依田正弘, 金子真一, 大熊哲:
超伝導アモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 薄膜の磁場誘起絶縁体相における熱電応答 II:
日本物理学会 2020 年秋季大会 2020 年 9 月 8 日-11 日, 熊本大学 Zoom 開催
8. 金子真一, 土屋和樹, 村上明花里, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲:
走査トンネル分光法による直流駆動された渦糸格子の観測:
日本物理学会 2020 年秋季大会 2020 年 9 月 8 日-11 日, 熊本大学 Zoom 開催

9. 家永紘一郎, 林太弘, 田本豊嘉, 金子真一, 大熊哲:
アモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 超伝導薄膜の量子臨界点近傍のゆらぎ:
日本物理学会 2020 年年次大会 2020 年 3 月 16 日-19 日, 名古屋大学東山キャンパス アップロード Zoom 開催
10. 宮川聖, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲:
可逆不可逆転移に及ぼす渦糸速度の影響:
日本物理学会 2020 年年次大会 2020 年 3 月 16 日-19 日, 名古屋大学東山キャンパス アップロード Zoom 開催 (物理学会学生優秀発表賞)
11. 前垣内舜, 宮川聖, 家永紘一郎, 金子真一, 坂田英明, 大熊哲:
Se ドープした ZrTe_3 における渦糸ダイナミクス:
日本物理学会 2020 年年次大会 2020 年 3 月 16 日-19 日, 名古屋大学東山キャンパス アップロード Zoom 開催
12. 田本豊嘉, 家永紘一郎, 依田正弘, 林太弘, 金子真一, 大熊哲:
超伝導アモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 薄膜の磁場誘起絶縁体相における熱電応答:
日本物理学会 2020 年年次大会 2020 年 3 月 16 日-19 日, 名古屋大学東山キャンパス アップロード Zoom 開催
13. 村上明花里, 土屋和樹, 小川貴史, 金子真一, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲:
走査トンネル分光法による直流駆動させた渦糸の観察 III:
日本物理学会 2020 年年次大会 2020 年 3 月 16 日-19 日, 名古屋大学東山キャンパス アップロード Zoom 開催
14. 土屋和樹, 村上明花里, 小川貴史, 金子真一, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲:
走査トンネル分光法で観測する直流駆動された渦糸格子の方位:
日本物理学会 2020 年年次大会 2020 年 3 月 16 日-19 日, 名古屋大学東山キャンパス アップロード Zoom 開催
15. 家永紘一郎, 林太弘, 田本豊嘉, 金子真一, 大熊哲:
熱電効果で探る 2 次元超伝導体の異常金属状態 -量子臨界現象と渦糸状態-:
ワークショップ「超伝導物質, トポロジカル物質」 2021 年 3 月 25-26 日, つくば物質・材料研究機構 (招待講演)
16. 大熊哲, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一:
可逆不可逆転移近傍の渦糸配置 -超秩序構造の創出・検出・制御-:
科研費新学術領域研究 ハイパーマテリアル Web 領域会議 2021 年 3 月 11 日 (Zoom)
17. 家永紘一郎:
熱電効果測定で探る 2 次元超伝導体の量子臨界現象と渦糸状態:
極低温研究支援センター研究発表会 2021 年 1 月 27 日, 東京工業大学 大岡山キャンパス
18. 大熊哲, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一:
可逆不可逆転移近傍の渦糸配置:
科研費新学術領域研究 第 5 回 ハイパーマテリアル Web 領域会議 2020 年 12 月 9 日 (Zoom)
19. 大熊哲, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一:
動的秩序化と可逆不可逆転移:
科研費新学術領域研究 第 4 回 ハイパーマテリアル Web 領域会議 2020 年 7 月 16 日 (Zoom)

20. 大熊哲:
Hyper vortex matter:
科研費新学術領域研究 第3回 ハイパーマテリアル Web 領域会議 2020年5月19日
(Zoom)
21. 家永紘一郎:
熱電応答で探るアモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 薄膜の異常金属状態と超伝導ゆらぎ:
極低温研究支援センター研究発表会 2020年1月21日, 東京工業大学 大岡山キャンパス

国際会議

1. K. Ienaga, T. Hayashi, Y. Tamoto, S. Kaneko, S. Okuma
Quantum criticality inside the field-induced metallic state in an amorphous superconducting thin film
APS March Meeting 19 March 2021 (online)
2. K. Ienaga, T. Hayashi, Y. Tamoto, S. Kaneko, S. Okuma
Quantum criticality associated with the field-induced superconductor-metal-insulator transition in amorphous thin films
33rd International Symposium on Superconductivity (ISS'20), Tsukuba, 2-4 December 2020. (invited talk)
3. S. Maegochi, K. Ienaga, S. Miyagawa, S. Kaneko, S. Okuma
Irreversibility transition caused by increased shear amplitude and vortex density
33rd International Symposium on Superconductivity (ISS'20), Tsukuba, 2-4 December 2020.
4. S. Maegochi, S. Miyagawa, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma
Effects of the velocity on the reversible-irreversible transition in a periodically sheared vortex system
33rd International Symposium on Superconductivity (ISS'20), Tsukuba, 2-4 December 2020.

7. 極低温研究支援センター・大岡山 利用研究室一覧 (2020年度)

| 所属 | 研究室 | 利用項目 |
|------|--------|----------|
| 物理学 | 田中研 | He, N, 実 |
| 物理学 | 佐藤研 | N |
| 物理学 | 平原研 | He, N |
| 物理学 | 金森研 | He, N |
| 物理学 | 松下研 | He, N |
| 物理学 | 中村研 | N |
| 物理学 | 学生実験 | He, N |
| 化学 | 西野研 | He, N, 実 |
| 化学 | 腰原研 | He, N |
| 化学 | 沖本研 | He, N |
| 化学 | 石谷・前田研 | He |
| 化学 | 江口研 | He, N |
| 化学 | 工藤研 | He, N |
| 化学 | 大森研 | He, N |
| 化学 | 岩澤・鷹谷研 | He |
| 化学 | 岡田・福原研 | N |
| 化学 | 川口研 | N |
| 化学 | 豊田研 | N |
| 化学 | 河野研 | N |
| 地球惑星 | 上野研 | N |
| 材料 | 早川研 | He, N |
| 材料 | 森研 | He, N, 実 |
| 材料 | 早水研 | N |
| 材料 | 鶴見・武田研 | He, N |
| 応用化学 | 古屋(秀)研 | N |
| 応用化学 | 鈴木(栄)研 | N |
| 応用化学 | 伊原研 | N |
| 応用化学 | 安藤(慎) | N |
| 応用化学 | 高分子-本館 | He |
| 応用化学 | 高分子-東2 | He |

| 所属 | 研究室 | 利用項目 |
|-------|----------------|----------|
| 応用化学 | 田中(健)研 | He, N |
| 応用化学 | 田中(浩)研 | He, N |
| 応用化学 | 田中(克)研 | N |
| 応用化学 | 高尾研 | He |
| 応用化学 | 桑田研 | He, N |
| 応用化学 | 山中研 | N |
| 応用化学 | 伊藤研 | He, N |
| 応用化学 | 大友研 | He, N |
| 応用化学 | 村橋研 | N |
| 応用化学 | 一杉研 | N |
| 応用化学 | 中嶋研 | N |
| 応用化学 | 芹澤研 | N |
| 応用化学 | 石曾根研 | N |
| 応用化学 | 佐藤研 | N |
| 機械 | 八木研 | N |
| 機械 | 平田研 | N |
| 機械 | 井上研 | N |
| 機械 | 店橋研 | N |
| 機械 | 伏信研 | N |
| 機械 | 野崎研 | N |
| 電気電子 | 宮本研 | N |
| 電気電子 | 山田研 | N |
| 電気電子 | 間中研 | N |
| 電気電子 | Pham Nam Hai 研 | He, N |
| 電気電子 | 安岡研 | N |
| 電気電子 | 中川研 | He, N |
| 電気電子 | 小寺研 | He, N, 実 |
| 電気電子 | 波多野・岩崎研 | N |
| 環境・社会 | 佐々木栄一研 | N |
| 未来研 | 浅田研 | He |

| 所属 | 研究室 | 利用項目 |
|---------|---------|----------|
| 未来研 | 河野研 | He, N |
| 生命理工 | 二階堂研 | N |
| 生命理工 | 蒲池研 | He |
| 化学生命科学研 | 藤井研 | N |
| 地球生命研 | 地球生命研共通 | He |
| 先導原子力研 | 松本研 | N |
| 先導原子力研 | 鷹尾研 | He |
| 総合安全管理セ | 施設安全企画課 | N |
| 物理・極低セ | 藤澤研 | He, N |
| 物理・極低セ | 大熊研 | He, N, 実 |

He : 液体ヘリウム, N : 液体窒素, 実 : 共通実験室

